

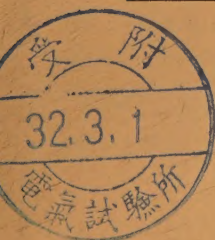
日 本 大 學  
工 學 研 究 所 彙 報

第 14 號

目 次

内部空洞型 Reflex Klystron 用増幅回路	石 井 好 隆	頁 1
本邦産トール油レゼン分中の二三の成分について	伊 藤 舜 介	11
酸化エチレン縮合体に関する研究(第3報)	池 村 糺	14
土の毛管系とその特性に関する実験的研究	浅 川 美 利	19
試錐機用管継手部位の研究	坂 山 大 三	24
円弧ダイス及び円嚙プラグによる薄肉パイプの引抜きについて	粟 屋 正 春	30
金属塩水溶液の流電作用による金属表面の変遷に関する研究(第10報)	安房信輝・山本洋一	38

昭和 31 年 12 月



U. of ILL. LIBRARY  
AUG 7 1972  
CHICAGO CIRCLE

JOURNAL OF THE RESEARCH INSTITUTE OF TECHNOLOGY,  
NIHON UNIVERSITY

---

No. 14 December, 1956

---

CONTENTS

	Page
Amplification Circuit for the Internal Cavity Type Reflex Klystron ..... By Yoshitaka ISHII..	1
Study on Some Kind of Resens of Japanese Tall Oil.. By Shunsuke ITO..	11
Studies on the Condensation Products of Ethylene Oxide (3) ..... By Tadashi IKEMURA..	14
Experimental Study on the Capillary System and its Characteristics in Soils ..... By Mitoshi ASAKAWA..	19
A Method of Strengthening Rod-Couplings of Boring Machines Used in Mineralogical Surveys ..... By Daizo NUKIYAMA..	24
Drawing Thin-walled Tubing with a Cylindrical Plug through a Circular Countour of Die ..... By Masaharu AWAYA..	30
A Study on the Changes of Metal Surface Caused by Electrolysis in Metallic Salt Solutions (Report 10) ..... By Nobuteru AWA and Yoichi YAMAMOTO..	38

---

These publications are issued at irregular intervals. The authors alone are responsible for the contents of these reports.



# 内部空洞型 Reflex Klystron 用増幅回路

(1956 年 3 月 12 日受理)

石 井 好 隆\*

## Amplification Circuit for the Internal Cavity Type Reflex Klystron

By Koryu ISHII

Theoretical examinations were made of the amplification circuits for the internal cavity type reflex klystrons 2K25 and 723A/B.

Fig. 1 shows a fundamental, actual construction of the amplification circuit for the internal cavity type reflex klystron, and Fig. 2 is the equivalent circuit of Fig. 1.

In order to attain amplification, the conditions of both Eqs. (1) and (5) are to be satisfied. Eq. (1) is for the transient and Eq. (5) is for the steady state of the amplification. In the equations,  $v$  is microwave voltage across the gap of the tube,  $R_{sh}$  is shunt resistance across the gap, and  $R_e$  is the electronic resistance of the tube across the gap, and  $A$  is the amplification degree of this amplifier. They are given by Eqs. (14), (2) and (6). Eq. (14) comes from calculations of the circuit of Fig. 2, and Eq. (6) shows the theoretical relation between the gain of this amplifier and the impedance of the external amplification circuit which are given by Eqs. (14) and (15).

In Eq. (6),  $V_0$  is the anode voltage,  $I_0$  indicates the effective beam current,  $\beta$  is the gap coefficient of the tube,  $N$  is the drift cycles of the klystron,  $\theta$  is the drift angle of the tube, and  $\cos \phi$  represents the power factor of the external circuit viewed from the gap of the reflex klystron.

Two kinds of actual circuits were tested. Fig. 6 shows the amplifier using the cut-off type variable reactor, and Fig. 7 is another type of the amplifier using a coaxial type variable reactor.

The reactance of the cut-off type variable reactor was calculated, and the result is given by Eq. (52). The numerical value of this reactance is shown in Fig. 10. The stroke "s" of the shorting plunger was taken as a parameter.

The impedance which gave the optimum gain calculated from Eqs. (52), (14) and (15), is given by Eqs. (86) and (87). Gain calculated from Eq. (6) with the conditions of Eqs. (96) and (98), which is given by the optimum gain in the experiment is Eq. (99). The experimental gain was as indicated by Eq. (97).

On the other hand, the reactance of the coaxial type variable reactor is given by Eq. (88), and numerical values are shown in Fig. 12.

By a method similar to the former, parallel resistance and reactance  $R_{sh}$  and  $X_{sh}$  are obtained, and they are shown in Fig. 12. Calculated gain by Eq. (6) under the conditions of Eqs. (100) and (101), is shown by the curve of Fig. 13.

Plots of Fig. 13 are experimental results.

When the optimum gain was obtained, theory and experiment agreed very well.

The frequency band width is given theoretically by Eqs. (102) and (103), where  $N_0$  is the drift cycle when the gain is the optimum,  $A_0$ , and  $N_1$  is the drift cycle at the frequency of gain of 3db down.

Experimental values are given by Eqs. (104) and (110) for the cut-off type and coaxial type variable reactors, respectively.

Calculated results are in Eqs. (109) and (112), respectively. Both experimental and calculated results also agreed very well.

## 1. 緒 言

Reflex Klystron の出力 impedance を適当に調整すると極超短波を増幅し得ることは、既に知られていた<sup>1)</sup>.

即ち、Reflex Klystron の電子流が放出する Power が、外部回路の消費する power を上廻る場合には発振が成立するが、外部回路の消費する電力を電子流の出す電力

\* 電気工学科

が補い得ない場合には発振が成立しない。しかし、入力信号電力と、これによる電子流の再生作用に依る電力との和が、回路の消費する電力を上廻る場合には振動が助長される。しかし、内部空洞型 Reflex Klystron の発振間隙からみた外部回路の impedance は比較的高く、これを増幅に最適な状態に調整することは、なかなか困難である。従つて筆者は、特に内部空洞型の Reflex Klystron に対して増幅に適当な impedance 調整を行い得る回路を考案したので<sup>2), 3), 4), 5), 9), 13), 14)</sup>、以下これに関する理論及び実験の両方から動作機構を検討してみよう。

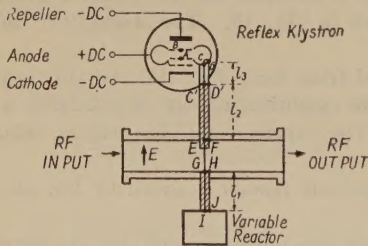
## 2. 原 理

### (1) 基本回路

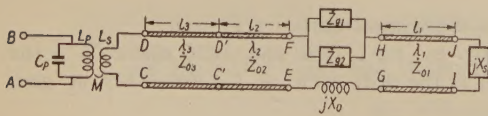
第1図は内部空洞型 Reflex Klystron 増幅器の基本回路である。真空管の出力同軸 cable の中心導体を図の如く延長し、その先端を可変 reactor で終端したものである。

### (2) 等価回路

上記の基本回路に対し第2図に示す如き等価回路を考得る。ここで、図中の端子組群  $AB, CD, \dots$  等は第1図中の端子組群  $AB, CD, \dots$  等に対応するもの



第1図 Reflex Klystron 増幅器 (内部空洞型) の基本回路。



第2図 内部空洞型 Reflex Klystron 増幅器の等価回路。

である。 $C_p$  及び  $L_p$  はそれぞれ Klystron の空洞共振器の等価並列 capacitance 及び等価並列 inductance で、 $L_s$  は結合 loop の inductance である。 $\lambda_1, \lambda_2$  及び  $\lambda_3$ 、と  $z_{01}, z_{02}$  及び  $z_{03}$  はそれぞれ第2図中に示した伝送線路上の波長及び特性 impedance である。 $z_{01}$  及び  $z_{02}$  はそれぞれ、同軸管と導波管の接合部分から入

力側回路及び出力側回路を見た impedance である。 $X_0$  は導波管中に出ている同軸管の中心導体の reactance で  $X_s$  は可変 reactor の reactance である。

### (3) 利得と impedance との間の一般的関係

増幅の過渡状態が成立するためには

$$\left. \begin{aligned} \frac{v_t^2}{2R_{sh}} &> -\frac{v_i^2}{2R_e} \\ \frac{v_t^2}{2R_{sh}} &< \frac{v_i^2}{2R_{sh}} - \frac{v_t^2}{2R_e} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

なる必要がある。但し  $v_t$  は Reflex Klystron の発振間隙にかかる超高周波電圧の最大値で、 $v_i$  は同間隙にかかる入力電圧である。 $R_{sh}$  は同間隙から外部をみた回路の並列抵抗で  $R_e$  は Reflex Klystron の発振間隙にかかる電子 beam による負性抵抗でこれは、

$$\frac{1}{R_e} = -\frac{2\beta I_0 J_1(a)}{v_t} \cos \phi \quad (2)^6$$

である。ここで

$$a = \frac{\theta \beta v_t}{2V_0} \quad (3)^7$$

$$\text{そして } \phi = \theta - 2\pi \left( n - \frac{1}{4} \right) \quad n=1, 2, 3, \dots \quad (4)^8$$

で  $\cos \phi$  は外部回路の力率である。

但し、

$\beta$ : Reflex Klystron の間隙係数。

$I_0$ : 有効電子流。

$J_1$ : Bessel 函数。

$V_0$ : 直流加速電圧。

$\theta$ : 電子集群の中心が drift space を走る走行角で、transit cycles を  $N$  とすれば  $\theta = 2\pi N$  である。

従つて、増幅の定常状態では

$$\frac{v^2}{2R_{sh}} = \frac{v^2}{2AR_{sh}} - \frac{v^2}{2R_e} \quad (5)$$

ここで  $v$  は定常状態に於いて真空管の間隙に現れる超高周波電圧で  $A$  は電力増幅度である。小信号電力では (2), (3) 及び (4) 式に依り

$$\begin{aligned} A &= \frac{V_0}{V_0 - I_0 \beta^2 R_{sh} \pi n \cos \phi} \\ &= \frac{V_0}{V_0 + \frac{1}{2} I_0 R_{sh} \beta^2 \theta \sin \theta} \end{aligned} \quad (6)^{11}$$

である。

従つて外部回路及び真空管の各電極にかかる電圧を調整することに依り  $R$  及び  $R_e$  を変化せしめ (1) 及び (5) 式を満足するようにするのが本研究の主眼である。



#### (4) Reflex klystron の出力 impedance に関する一般式.

Reflex Klystron の電子抵抗及び外部回路の並列抵抗は、真空管の電圧及び真空管の構造及び外部回路の調整に依つて変化するが、ここでは第2図に示す可変 reactor の reactance  $X_s$  に依つて  $R_{sh}$  が如何に変化するか計算してみよう。

$IJ$  端子から reactor を見た入力 impedance は

$$\dot{z}_{IJ} = jX_s \quad (7)$$

である。第2図  $GH$  端子からみた reactor 側の入力 impedance は

$$\dot{z}_{GH} = \dot{z}_{01} \frac{j \left( X_s + \dot{z}_{01} \tan \frac{2\pi l_1}{\lambda_1} \right)}{\dot{z}_{01} - X_s \tan \frac{2\pi l_1}{\lambda_1}} \quad (8)$$

となり、 $EF$  端子から出力側を見た impedance は

$$\dot{z}_{EF} = \frac{\dot{z}_{01}\dot{z}_{02}}{\dot{z}_{01} + \dot{z}_{02}} + j \left\{ \frac{\dot{z}_{01} \left( X_s + \dot{z}_{01} \tan \frac{2\pi l_1}{\lambda_1} \right)}{\left( \dot{z}_{01} - X_s \tan \frac{2\pi l_1}{\lambda_1} \right)} + \omega L_0 \right\} \quad (9)(a)$$

$$\equiv R_{EF} + jX_{EF} \quad (9)(b) *$$

$$\dot{z}_{CD} = \dot{z}_{03} \frac{\dot{z}_{EF} \left( \dot{z}_{02} - \dot{z}_{03} \tan \frac{2\pi l_2}{\lambda_2} \cdot \tan \frac{2\pi l_3}{\lambda_3} \right) + j\dot{z}_{02} \left( \dot{z}_{02} \tan \frac{2\pi l_2}{\lambda_2} + \dot{z}_{03} \tan \frac{2\pi l_3}{\lambda_3} \right)}{\dot{z}_{02} \left( \dot{z}_{03} - \dot{z}_{02} \tan \frac{2\pi l_2}{\lambda_2} \cdot \tan \frac{2\pi l_3}{\lambda_3} \right) + j\dot{z}_{EF} \left( \dot{z}_{03} \tan \frac{2\pi l_2}{\lambda_2} + \dot{z}_{02} \tan \frac{2\pi l_3}{\lambda_3} \right)} \quad (12)$$

$$\equiv R_{CD} + jX_{CD}$$

† 従つて、第2図の  $AB$  端子、即ち真空管の発振間隙から外側を見た出力 impedance  $z_{AD}$  は次式で与えられる。

$$\frac{1}{\dot{z}_{AB}} = j\omega C_p + \frac{\dot{z}_{CD} + j\omega L_s}{\{(\omega M)^2 - \omega^2 L_s L_p\} + j\omega L_p \dot{z}_{CD}} \quad (13)$$

となる。

従つて (1), (5) 及び (6) 式中の、発振間隙にかかる多部回路の並列抵抗  $R_{sh}$  は、

$$R_{sh} = \frac{X_1^2 + \omega^2 L_p^2 R_{CD}^2}{R_{CD}(\omega M)^2} \quad (14)$$

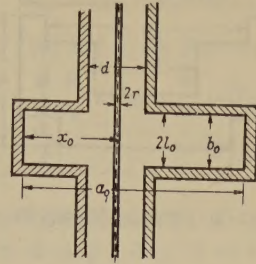
$$X_1^2 = \{(\omega M)^2 - \omega^2 L_s L_p\} - X_{CD} \omega L_p \quad (15)$$

そして発振間隙にかかる外部回路の並列 reactance は  $X_{sh}$

$$= - \frac{X_1^2 + \omega^2 L_p^2 R_{CD}^2}{\omega C_p (X_1^2 + \omega^2 L_p^2 R_{CD}^2) + (X_{CD} + \omega L_s) X_1 - \omega L_p R_{CD}^2} \quad (15)$$

となる。ここで  $M$ ,  $L_p$ ,  $L_s$ , 及び  $C_p$  等はそれぞれ次式で与えられている。

\* ここで  $L_0$  は導波管中に出ている中心導体の induc-



第3図  $a_0, b_0, d, l_0, r$  及び  $x_0$  の定義。

tance で、簡単のためにこれを一樣な半径  $r$  の長さ  $l_0$  なる導体と見なせば、第3図における、

$$L_0 = \frac{\mu_0 l_0}{\pi} \left( \ln \frac{4l_0}{r} - 1 \right) \quad (10)$$

である。

第2図の  $C'D'$  端子から見た出力 impedance は

$$\dot{z}_{C'D'} = \dot{z}_{02} \frac{\dot{z}_{EF} + j\dot{z}_{02} \tan \frac{2\pi l_2}{\lambda_2}}{\dot{z}_{02} + j\dot{z}_{EF} \tan \frac{2\pi l_2}{\lambda_2}} \quad (11)$$

同様に  $CD$  端子から負荷側を見た impedance は†

即ち、

$$M = \frac{\mu_0}{2\pi} \cdot \frac{S_s}{r_s} \quad (16)(11)$$

但し、 $\mu_0$  は真空中の導磁率で、 $S_s$  は結合 loop の電線の中心線の囲む面積で、 $r_s$  は、結合 loop の面積の中心点から空洞共振器の対称中心軸に下した垂線の長さである。

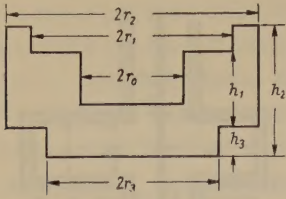
また、

$$L_p = \frac{\mu_0}{2\pi} \left( h_1 \ln \frac{r_1}{r_0} + h_2 \ln \frac{r_2}{r_1} - h_3 \ln \frac{r_2}{r_3} \right) \quad (17)(12)$$

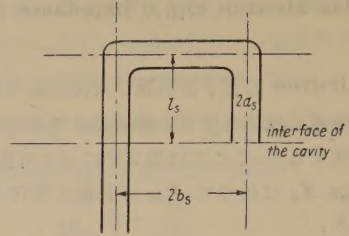
ここで、 $h_1, h_2, h_3, r_1, r_2$ , 及び  $r_3$  はそれぞれ真空管の空洞共振器の寸法から定つて来るもので、第4図に示してある。

$$L_s = \frac{\mu_0 l_s}{\pi} \ln \frac{b_s + \sqrt{b_s^2 - a_s^2}}{a_s} + \frac{\mu_0 l_s}{\pi} \left( \ln \frac{4b_s}{a_s} - 1 \right) \quad (18)(13)$$

但し、 $a_s, b_s$  及び  $l_s$  は真空管の結合 loop の幾何学的寸法により定まるもので、第5図に示してある。



第4図 真空管内空洞共振器の一般形.



第5図 空洞共振器の結合 loop の寸法.

なを,

$$C_p = \epsilon_0 \left[ \frac{\pi r_0^2}{d_g} - 4r_0 \ln \frac{d_g}{e l_M} \right] \quad (19)^{12)}$$

ここで  $d_g$  は真空管の発振間隙の間隔で,

$$l_M = \frac{1}{2} \frac{V \{ h_1^2(r_1 - r_0) + h_2^2(r_2 - r_1) + h_3^2(r_3 - r_2) \}^2 + \{ h_1(r_1 - r_0)^2 + h_2(r_2 - r_1)(r_1 + r_2 - 2r_0) + h_3(r_3 - r_2)(r_2 + r_3 - 2r_0) \}^2}{(r_1 - r_0)h_1 + (r_2 - r_1)h_2 + (r_3 - r_2)h_3} \quad (20)^{12)}$$

である.

(14) 及び (15) 式中の  $R_{CD}$  及び  $X_{CD}$  は外部回路の可変 reactor の reactance  $X_s$  の函数であつて (9) 式及び (12) 式より,

$$\left. \begin{aligned} R_{CD} &= \frac{\xi}{(\gamma - \delta \Phi)^2 + \eta} \\ \text{但し,} \\ \Phi &\equiv \frac{\dot{z}_{01}(X_s + \psi)}{\dot{z}_{01}^2 - X_s \psi} + X \\ X_{CD} &= \frac{(\alpha \Phi + \beta)(\gamma - \delta \Phi) - \zeta}{(\gamma - \delta \Phi)^2 + \eta} \end{aligned} \right\} \quad (21)$$

ここで,

$$\alpha \equiv \dot{z}_{02} - \dot{z}_{03} \left( \tan \frac{2\pi l_2}{\lambda_2} \right) \left( \tan \frac{2\pi l_3}{\lambda_3} \right) \quad (22)$$

$$\beta \equiv \dot{z}_{02} \tan \frac{2\pi l_2}{\lambda_2} + \dot{z}_{03} \tan \frac{2\pi l_3}{\lambda_3} \quad (23)$$

$$\gamma \equiv \dot{z}_{02} \left\{ \dot{z}_{03} - \dot{z}_{02} \left( \tan \frac{2\pi l_2}{\lambda_2} \right) \left( \tan \frac{2\pi l_3}{\lambda_3} \right) \right\} \quad (24)$$

$$\delta \equiv \dot{z}_{03} \tan \frac{2\pi l_2}{\lambda_2} + \dot{z}_{02} \tan \frac{2\pi l_3}{\lambda_3} \quad (25)$$

$$\psi \equiv \dot{z}_{01} \tan \frac{2\pi l_1}{\lambda_1} \quad (26)$$

$$\xi \equiv \dot{z}_{03} R_{EF} (\gamma \alpha + \beta \delta) \quad (27)$$

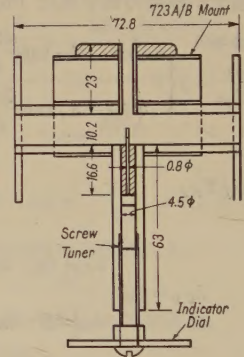
$$\eta = \delta^2 R_{EF}^2, \quad \zeta = \alpha \delta R_{EF}^2 \quad (28)$$

そして

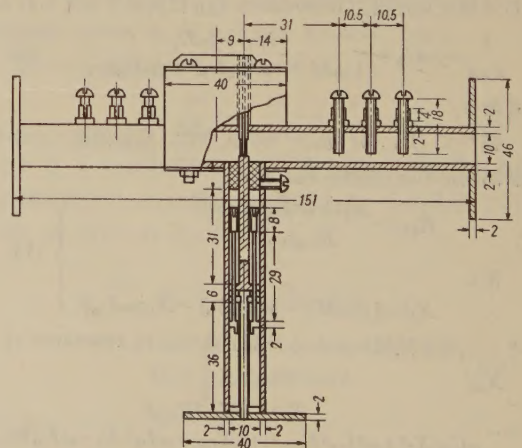
$$X = \omega L_0 + \Im \left( \frac{\dot{z}_{01} \dot{z}_{02}}{\dot{z}_{01} + \dot{z}_{02}} \right) \quad (29)$$

である.

以上の (14) 及び (21) 式に依つて, 真空管の空洞間隙から見た外部回路の並列抵抗  $R_{sh}$  が, 外部回路の可変 reactor の reactance  $X_s$  によつて如何なる函数形となるかが明らかになったと思う.



第6図 遮断型 reactor を用いた内部空洞型 reflex-klystron 用増幅回路.



第7図 同車軸型可変 reactor を用いた Reflex Klystron 増幅器.



### 3. 実際の回路

内部空洞型 Reflex Klystron の出力 impedance を制御する回路は以上のことから種々考えられるが、ここでは、遮断型可変 reactor を用いた場合と、同軸型可変 reactor を用いた場合に就いて考察してみる。

#### (1) 遮断型可変 reactor を用いた増幅回路。

第6図は遮断型可変 reactor を用いた増幅回路の実際の模様を示す、遮断領域にある円筒型導波管の短絡 plunger をネジで駆動し、その reactance を変化せしめるようにしてある。

#### (2) 同軸型可変 reactor を用いた増幅回路。

第7図は同軸型可変 reactor を用いた実際の増幅回路で、同調 piston をネジで動かして reactance を変化せしめる。

出力 impedance の調整は、上記の可変 reactor の他に、導波管上の Screw Tuner を調整しても行い得るが、実際は、可変 reactor を調整する方が便利である。

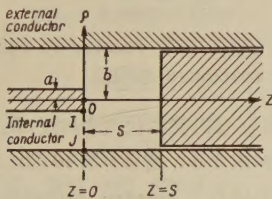
### 4. 増幅管の出力 impedance の実際

ここでは、前節で述べた実際の回路に就き、第2図の AB 端子から見た出力 impedance を算出してみよう。

#### (1) 遮断型可変 reactor を使用した場合。

##### (a) 一般式。(Reactance を求める一般式)。

(14) 及び (15) 等式により  $R_{sh}$  及び  $X_{sh}$  を求める場合、遮断型可変 reactor の reactance を知る必要がある。そこで、今、第8図の如く円筒座標を設ける。この図の端子 IJ は第1図及び第2図の端子 IJ に対応する。



第8図 遮断型可変 reactor に固定した座標軸。

同軸線上の mode は TEM mode とし、reactor 内に於ては TM の基本姿態のみと仮定すれば問題は簡単となり、電磁界は  $\varphi$  に無関係となり、Maxwell の方程式は次の様になる。

$$\dot{H}_z = \dot{E}_\varphi = \dot{H}_\rho = 0$$

で

$$\frac{\partial \dot{H}_\varphi}{\partial z} = -j\omega \epsilon \dot{E}_\rho \quad (30)$$

$$\frac{\partial}{\partial \rho}(\rho \dot{H}_\varphi) = j\omega \epsilon \rho \dot{E}_z \quad (31)$$

$$\frac{\partial \dot{E}_z}{\partial \rho} - \frac{\partial \dot{E}_\rho}{\partial z} = j\omega \mu \dot{H}_\varphi \quad (32)$$

(30), (31) 及び (32) 式より  $\dot{E}_\rho$  及び  $\dot{E}_z$  を消去すると

$$\frac{\partial^2}{\partial \rho^2}(\rho \dot{H}_\varphi) - \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho}(\rho \dot{H}_\varphi) + \frac{\partial^2}{\partial z^2}(\rho \dot{H}_\varphi) + \omega^2 \epsilon \mu (\rho \dot{H}_\varphi) = 0 \quad (33)$$

となる。ここで

$$|\rho \dot{H}_\varphi| \equiv \rho H_\varphi \equiv \rho R(\rho) \cdot Z(z) \quad (34)$$

とをく。ここで  $R$  は  $\rho$  のみの、 $Z$  は  $z$  のみの函数である。

(33) 及び (34) 式に変数分離法を適用して分離すれば次の二箇の常微分方程式を得る。

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{d^2}{d\rho^2}(\rho R) - \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho}(\rho R) + (\omega^2 \epsilon \mu - k^2)(\rho R) &= 0 \quad (35) \\ \frac{d^2 Z}{dz^2} + k^2 Z &= 0 \quad (36) \end{aligned} \right.$$

ここで  $k$  は分離定数である。

(36) 式の一般解は周知の如く

$$Z = A_0 \sin kz + B_0 \cos kz \quad (37)$$

となる、ここで  $A_0$  及び  $B_0$  は境界条件で定まる任意常数である。

短絡 Plunger の端面上では、

$$\left\{ \begin{aligned} \left[ \frac{\partial H_\varphi}{\partial z} \right]_{z=s} &= 0, \quad \text{即ち} \quad \begin{cases} z=s; Z=0 \\ \left[ \frac{dZ}{dz} \right]_{z=s} = 0 \end{cases} \end{aligned} \right. \quad (38)$$

であるから、これより (37) 式の常数が定まり

$$\begin{cases} A_0 = B_0 \\ k = \frac{\pi}{4s} \end{cases} \quad (39)$$

$$\quad (40)$$

となる、これを (37) 式に入れると

$$Z = A_0 \sin \left\{ \frac{\pi}{4} \left( \frac{z}{s} + 1 \right) \right\} \quad (41)$$

となり、(35) 式中の

$$\omega^2 \epsilon \mu - k^2 = \left( \frac{2\pi}{\lambda} \right)^2 - \left( \frac{\pi}{4s} \right)^2 \equiv -\xi^2 \quad (42)$$

となる、但し  $\lambda$  は自由空間波長である。(35) 式は Modified Bessel 函数の微分方程式に変換し得る。即ち、(42) の関係を (35) に用いれば、

$$\frac{d^2 R}{d\rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{dR}{d\rho} - \xi^2 \left\{ \frac{1}{(\xi \rho)^2} + 1 \right\} R = 0 \quad (43)$$

今、 $\xi \rho \equiv r$  とおけば (43) 式は

$$\frac{d^2 R}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dR}{dr} - \left( 1 + \frac{1}{r^2} \right) R = 0 \quad (44)$$

となる。この方程式の解は周知の如く、一次の Modified Bessel 函数となる。即ち、

$$R = A_1 I_1(r) + B_1 K_1(r) = A_1 I_1(\xi \rho) + B_1 K_1(\xi \rho) \quad (45)$$

となる。但し  $A_1$  及び  $B_1$  は任意常数である。従つて、(34), (41), 及び (45) 式より、

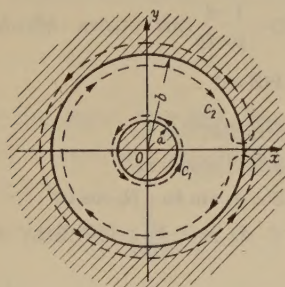
$$\dot{H}_\varphi = A_2 \left\{ I_1(\xi\rho) + \frac{B_2}{A_2} K_1(\xi\rho) \right\} \sin \left\{ \frac{\pi}{4} \left( \frac{z}{s} + 1 \right) \right\} \quad (46)$$

となる。

第8図に於ける端子  $IJ$  に於て、中心導体の全電流と、外部導体の内面の全電流とは等量反符号の筈であるから、

$$\oint_{c_1} [\dot{H}_\varphi]_{z=0} \rho d\varphi = - \oint_{c_2} [\dot{H}_\varphi]_{z=0} \rho d\varphi \quad (47)$$

但し積分路としては第9図に示すものをとるものとする。



第9図 入力電流を求める積分路。

(46) 及び (47) 式より

$$\frac{B_2}{A_2} = \frac{bI_1(\xi b) - aI_1(\xi a)}{aK_1(\xi a) - bK_1(\xi b)} \quad (48)$$

そこで、第8図の  $I$  端子に於ける入力電流は

$$\begin{aligned} \dot{I} &= \int_0^{2\pi} [\dot{H}_\varphi]_{z=0} \rho d\varphi = - \int_{2\pi}^0 [\dot{H}_\varphi]_{z=0} \rho d\varphi \\ &= \sqrt{2} A_2 \pi a b \frac{I_1(\xi b) K_1(\xi a) - I_1(\xi a) K_1(\xi b)}{a K_1(\xi a) - b K_1(\xi b)} \quad (49) \end{aligned}$$

となる。(30) 及び (46) 式より

$$\begin{aligned} \dot{E}_\rho &= - \frac{1}{j\omega\epsilon} \frac{\partial \dot{H}_\varphi}{\partial z} \\ &= \frac{jA_2\pi}{4\omega\epsilon s} \left\{ I_1(\xi\rho) + \frac{B_2}{A_2} K_1(\xi\rho) \right\} \cos \left\{ \frac{\pi}{4} \left( \frac{z}{s} + 1 \right) \right\} \quad (50) \end{aligned}$$

従つて第8図の  $IJ$  端子にかかる入力電圧は次の如くなる。

$$\begin{aligned} \dot{V} &= \int_a^b [\dot{E}_\rho]_{z=0} d\rho \\ &= \frac{j\pi A_2}{4V 2\omega\epsilon s} \left[ \{I_0(\xi b) - I_0(\xi a)\} \right. \\ &\quad \left. - \frac{B_2}{A_2} \{K_0(\xi b) - K_0(\xi a)\} \right] \quad (51) \end{aligned}$$

従つて (49) 及び (51) 式と (48) より、入力 impedance は

$$\begin{aligned} \dot{Z}_t &= \frac{\dot{V}}{\dot{I}} \\ &= j \frac{\sqrt{\frac{\mu}{\epsilon}}}{8 \frac{2\pi}{\lambda} a b \xi s} \cdot \frac{\{I_0(\xi b) - I_0(\xi a)\} \{a K_1(\xi a) - b K_1(\xi b)\} - \{K_0(\xi b) - K_0(\xi a)\} \{b I_1(\xi b) - a I_1(\xi a)\}}{I_1(\xi b) K_1(\xi a) - I_1(\xi a) K_1(\xi b)} \\ &= j X_s \quad (52) \end{aligned}$$

即ち、第(21)式中の遮断型 reactor の reactance  $X_s$  は上式で表わし得る。

### (b) 数値例。

以下実際に使用した増幅回路に就き、(14), (15) 式の出力 impedance を計算してみると次のようになる。

第6図の場合は、第8, 或いは9図に於て、

$$a = 0.4 \times 10^{-3} \text{ m} \quad (53)$$

$$b = 2.25 \times 10^{-3} \text{ m} \quad (54)$$

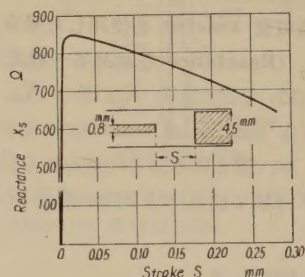
であり、この場合 reactor の空間は空気であるから、

$$V_{\mu_0/\epsilon_0} = 376.7 \Omega \quad (55)$$

で、試験波長は

$$\lambda = 3.07 \times 10^{-2} \text{ m}, \quad (f = 9760 \text{ Mc/sec}) \quad (56)$$

であつた。



第10図 遮断型可変 reactor の Stroke と reactance の関係

これ等の数値を (52) 式に代入すれば、 $X_s$  なる reactor の reactance が求まる。結果を第10図に示す。

然かし、この場合、reactor の円筒導波管の  $TM_{01}$  Mode の遮断波長  $\lambda_c$  は 0.59 cm で、この導波管に進入した電力が半値にまで下る距離を  $z_1$  とすれば、

$$z_1 = \frac{\log \frac{1}{\sqrt{2}}}{2\pi \sqrt{\left(\frac{1}{\lambda_c}\right)^2 - \left(\frac{1}{\lambda}\right)^2}} = 0.262 \times 10^{-3} \text{ m} \quad (57)$$

となる。従つて  $0.262 \times 10^{-3} \text{ m}$  以上の stroke に対しては、あまり意味がない。

実験によれば、 $s = 0.045 \text{ mm}$  の時に最大の利得があつたが、その時には、

$$X_s = 835 \Omega \quad (58)$$



となる。

第 (8) 式中の  $l_1$ ,  $\lambda_1$  及び  $z_{01}$  は、

$$l_1 = 16.6 \times 10^{-3} \text{ m} \quad (59)$$

$$\lambda_1 = \lambda / \sqrt{\epsilon_1^*} = 3.07 \times 10^{-2} / \sqrt{2.25} \\ = 2.046 \times 10^{-2} \text{ m} \quad (60)$$

$$z_{01} = \frac{138}{\sqrt{\epsilon_1^*}} \log_{10} \frac{b_1}{a_1} = 69 \Omega \quad (61)$$

であるから第 (8) 式により

$$z_{GH} = j21.5 \Omega \quad (62)$$

此の場合、簡単のために入力側及び出力側の導波管は、完全に整合しており、且つ入出力側の impedance が相等しいとすれば、

$$z_{g1} = z_{g2} = R_g + jX_g = \frac{T^2}{1+T^2} qZ_K + j \frac{T}{1+T^2} qZ_K \quad (63)^{(10)}$$

但し

$$Z_K = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} / \sqrt{1 - \left(\frac{\lambda}{2a_0}\right)^2} = 507.7 \Omega \quad (64)$$

$$\text{ここで } a_0 = 22.9 \times 10^{-3} \text{ m} \quad (65)$$

$$\text{で、この場合、第 3 図の } x_0 = a_0/2 \quad (66)$$

であるから

$$T = \left( \frac{2a_0}{\lambda_g} \right) \tan \frac{\pi x_0}{a_0} \rightarrow \infty \quad (67)$$

$$\text{そして } q = \frac{b_0}{d} = \frac{10.2 \times 10^{-3} \text{ m}}{3 \times 10^{-3} \text{ m}} = 3.4 \quad (68)$$

従つて

$$z_{g1} = z_{g2} = R_g = qZ_K = 1726.12 \Omega \quad (69)$$

となる。

第 (10) 式によれば

$$L_0 = 5.52 \times 10^{-9} \text{ henry} \quad (70)$$

となる。但し、

$$\left. \begin{aligned} r &= 0.5 \times 10^{-3} \\ l_0 &= 5.1 \times 10^{-3} \\ \mu_0 &= 4\pi/10^7 \end{aligned} \right\} \quad (71)$$

従つて、(9) 式、及び (62) 式により、

$$z_{EF} = (863.06 + j360.2) \Omega \quad (72)$$

となる。

この場合、第 (11) 式中の  $l_2$ ,  $\lambda_2$  及び  $z_{02}$  は

$$l_2 = 40.85 \times 10^{-3} \text{ m} \quad (73)$$

$$\lambda_2 = \frac{\lambda}{\sqrt{\epsilon_2^*}} = \frac{3.07 \times 10^{-2}}{\sqrt{2.54}} = 1.93 \times 10^{-2} \text{ m}$$

但しポリスチレンの数値、

$$\left. \begin{aligned} z_{02} &= \frac{138}{\sqrt{\epsilon_2^*}} \log_{10} \frac{b_2}{a_2} \\ &= \frac{138}{\sqrt{\epsilon_2^*}} \log_{10} \frac{1.5 \times 10^{-3}}{0.25 \times 10^{-3}} = 67.39 \Omega \end{aligned} \right\} \quad (73)$$

であり、従つて

$$z_{CD'} = (10.101 - j74.755) \Omega \quad (74)$$

となる。

次に線路 CDC'D' 上では

$$l_3 = 21 \times 10^{-3} \text{ m}$$

$$\lambda_3 = \frac{\lambda}{\sqrt{\epsilon_3^*}} = \frac{3.07 \times 10^{-2}}{\sqrt{1}} = 3.07 \times 10^{-2}$$

但し真空に対する数値、

$$z_{03} = \frac{138}{\sqrt{\epsilon_3^*}} \log_{10} \frac{b_3}{a_3} \quad (75)$$

$$= \frac{138}{\sqrt{\epsilon_3^*}} \log_{10} \frac{1.5 \times 10^{-3}}{0.25 \times 10^{-3}} = 107.39 \Omega$$

となる。(12) 式により、

$$z_{CD} = (9.356 + j65.392) \Omega \quad (76)$$

となる。

空洞共振器及び結合 loop に関しては、第 (16) 式により、

$$M = 2.8310 \times 10^{-11} \text{ Henry} \quad (77)$$

となる。但し

$$\left. \begin{aligned} s_g &= 2l_g b_g = 2 \times 0.5 \times 10^{-3} \times 0.625 \times 10^{-3} \\ &= 6.25 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \end{aligned} \right\} \quad (78)$$

$$r_g = 5.25 \times 10^{-3} \text{ m}$$

$$\mu_0 = 4\pi/10^7 \text{ Henry/m}$$

である。

第 (17) 式の空洞共振器に就いては、此の場合、2K25 或いは 723 A/B に就いて、

$$\left. \begin{aligned} h_1 &= h_2 = 2 \times 10^{-3} \text{ m} \\ h_3 &= 1.5 \times 10^{-3} \text{ m} \\ 2r_0 &= 2r_1 = 6.8 \times 10^{-3} \text{ m} \\ 2r_2 &= 21.5 \times 10^{-3} \text{ m} \\ 2r_3 &= 13.5 \times 10^{-3} \text{ m} \end{aligned} \right\} \quad (79)$$

であるから、

$$L_p = 3.208 \times 10^{-10} \text{ Henry} \quad (80)$$

となる。

第 (18) 式の結合 loop に関しては

$$\left. \begin{aligned} l_g &= 0.5 \times 10^{-3} \text{ m} \\ a_g &= 0.125 \times 10^{-3} \text{ m} \\ b_g &= 0.625 \times 10^{-3} \text{ m} \end{aligned} \right\} \quad (81)$$

であり、

$$L_g = 9.574 \times 10^{-10} \text{ Henry} \quad (82)$$

となる。

(79) の条件を第 (2) 式に代入すれば、

$$l_M = 2.779 \times 10^{-3} \text{ m} \quad (83)$$

となる。そしてこの場合

$d_g=0.61 \times 10^{-3} \text{ m}$  (84)

であるから、第 (19) 式により、

$C_p=8.34 \times 10^{-13} \text{ Farad}$  (85)

となる。

(76), (77), (80), (82), (85) を第 (14) 式及び第 (15) 式に代入すれば、

$R_{sh}=2.9999 \times 10^5 \Omega$  (86)

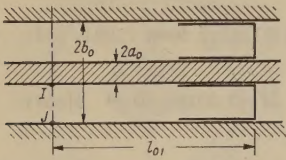
$X_{sh}=-3.91 \times 10^3$  (87)

となる。

(2) 同軸型可変 reactor を用いた場合.

この場合 reactor は第 11 図のようになっているから、reactance は周知の如く、

$X_s=z_{00} \tan \frac{2\pi l_{01}}{\lambda}$  (88)



第 11 図 同軸型可変 reactor.

となる。ここで、 $z_{00}$  は同軸線路の特性 impedance で、 $l_{01}$  は第 11 図に示すような線路長である。この場合、

$$z_{00} = \frac{138}{\sqrt{\epsilon_0^*}} \log_{10} \frac{b_0}{a_0}$$
$$= 138 \log_{10} \frac{5 \times 10^{-3}}{1.5 \times 10^{-3}} = 70.7 \Omega$$
 (89)

$a_0, b_0$  の意味は第 11 図に示す通りである。そして、この場合  $l_{01}$  は可変で、

$l_{01}=8 \times 10^{-3} \sim 28 \times 10^{-3}$  (90)

であるから、 $\lambda=3.07 \times 10^{-2} \text{ m}$  即ち、周波数  $f=9706 \text{ Mc/sec}$  に対して (88) 式により  $X_s$  を計算すると第 12 図の  $X_s$  曲線のようになる。

前節と同様にして

$l_1=9 \times 10^{-3} \text{ m}$

$\lambda_1 = \frac{\lambda}{\sqrt{\epsilon_1^*}} = \frac{3.07 \times 10^{-2}}{\sqrt{2.54}} = 1.93 \times 10^{-2} \text{ m}$

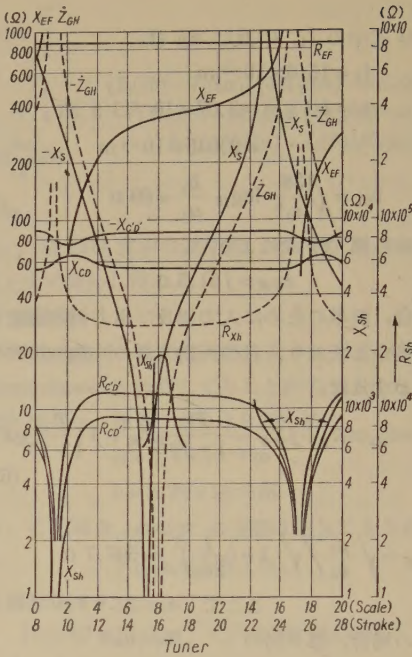
$$z_{01} = \frac{138}{\sqrt{\epsilon_1^*}} \log_{10} \frac{b_1}{a_1}$$
$$= \frac{138}{\sqrt{2.54}} \log_{10} \frac{5 \times 10^{-3}}{1.5 \times 10^{-3}} = 44.3 \Omega$$
 (91)

そこで、第 (8) 式により  $z_{GH}$  を計算し得るが、その結果を第 12 図に示す。

(69) 式の場合と同様にして

$z_{o1}=z_{o2}=1726.12 \Omega$  (92)

で、第 (10) 左の



第 12 図 各端子から見た reflex klystron の出力 impedance.

$r=0.5 \times 10^{-3} \text{ m}$   
 $l_0=5.1 \times 10^{-3} \text{ m}$  } (93)

であるから、ジョイントの inductance は、

$L_0=5.52 \times 10^{-9} \text{ Henry}$  (94)

となる。従つて第 (9) 式により、

$$z_{EF}=863.06 + j(338.7 \times X_{GH})$$
$$\equiv R_{EF} + jX_{EF}$$
 (95)

となり結果は、第 12 図に示すようになった。

真空管内の常数は前節の場合と同様として前節と同様の手段を繰り返すことにより、 $z_{CD} \equiv R_{CD} + jX_{CD}$ 、及び、 $R_{sh}$  及び  $X_{sh}$  を得るが、それ等を第 12 図に示す。

5. 計算結果と実験結果

(1) 本増幅器の利得.

(a) 遮断型の場合.

実験による本増幅器の増幅度を  $A_{exp.}$  とすれば、

加速電圧  $V_0=280 \text{ volts}$   
反射板電圧  $V_r=-88 \text{ volts}$   
周波数  $f=9760 \text{ Mc/sec}$   
reactor の stroke  $s=0.045 \times 10^{-3} \text{ m}$  } (96)

なる時、

$A_{exp.}=23.2 \text{ db}$  (97)<sup>13)</sup>



であつた。

そして、この時、Reflex Klystron 723 A/B に対して

$$I_0 = 7.7 \text{ mA}, \quad (98 \text{ a})$$

$$\beta = \frac{\sin \frac{3170 d_g}{2\lambda V_0}}{\frac{3170 d_g}{2\lambda V_0}} = 0.525 \quad (98 \text{ b})$$

[ $d_g$  に就いては (84) 式参照]

$$N = 4fl \frac{\sqrt{\frac{m}{2e} V_0}}{|V_0| + |V_r|} = 10.75 \quad (98 \text{ c})$$

ただし、 $l$  は drift space の距離で、

$$l = 3.44 \times 10^{-3} \text{ m},$$

で電子の比電荷  $e/m = 1.761 \times 10^{11} \text{ culombs/kg}$  としてある。

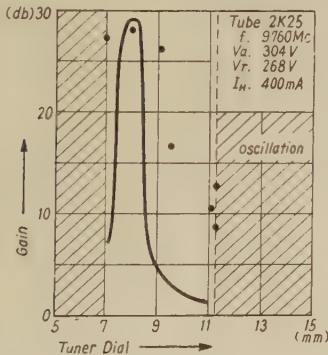
$$R_{sh} \cos \phi = R_{sh} \sqrt{\frac{X_{sh}}{R_{sh}^2 + X_{sh}^2}} \\ \approx 3.91 \times 10^3 \Omega \quad (98 \text{ d})$$

但し、(86), (87) 両式の結果を代入してある。

(96) 及び (98) を (6) 式に代入すれば増幅度の計算値として

$$A_{cal} = 22.71 \text{ db} \quad (99)$$

を得るが、これは (97) の実験値と比較すると殆ど一致していることがわかる。



第13図 同軸型 Reactor の Stroke と利得との関係。

(b) 同軸型可変 reactor を用いた場合。

使用真空管は 2K25 で、

$$\left. \begin{array}{ll} \text{陽極電圧} & V_0 = 304 \text{ volts} \\ \text{反射板電圧} & V_r = -268 \text{ volts} \\ \text{周波数} & f = 9760 \text{ Mc/sec.} \end{array} \right\} \quad (100)$$

に固定し、増幅度と reactor の stroke との関係を実験的に調べた結果は第13図の plot のようになる。

た(5)9)。

$$\left. \begin{array}{ll} \text{この場合,} & I_0 = 2.5 \times 10^{-3} \text{ A} \\ & \beta = 0.55 \\ & N = 6.75 \end{array} \right\} \quad (101)$$

であつたから、前と同様にして第12図中の  $R_{sh}$  及び  $X_{sh}$  と第(6)式を用いると第13図の実線で示される増幅度の計算結果を得る。第13図に於て実験結果と計算結果を比較すると、増幅度が最大における値は両者ともよく一致しているが、其の他の場合は傾向のみの一致に止る。これは、短絡 plunger の接触不良並びに不安定とか、回路に対する電子同調の不十分とかの原因により、第(6)式の妥当性が当てはまらないものと思われる。

(2) 周波数帯域幅。

第(6)式において  $\theta = 2\pi N$  と  $R_{sh}$  の周波数に対する影響を比較した場合に前者が後者よりも大きいと仮定できるならば  $-3 \text{ db}$  の利得の変化に対応する周波数帯域幅は

$$\Delta f = f_0 \left( 1 - \frac{N_1}{N_0} \right) \quad (102)$$

ここで  $f_0$  は増幅度が最大となるときの中心周波数で、 $N_0$  は中心周波数に対する drift-cycle で、 $N_1$  は増幅度が  $-3 \text{ db}$  のところの周波数に於ける drift-cycle であつて、これは次式の根である。

$$\frac{N_1 \sin 2\pi N_1}{N_0 \sin 2\pi N_0} = \frac{2 - A_0}{1 - A_0} \quad (103)$$

ここで  $A_0$  は中心周波数に於ける最大増幅度である。

(a) 遮断型可変 reactor を用いた場合。

実験によれば<sup>13)</sup>

$$A_0 = 20.5 \text{ db} = 111 \quad (104)$$

$$\Delta f_{exp} = 20 \text{ Mc/sec} \quad (105)$$

$$N_0 = 10.75 \quad (106)$$

$$f_0 = 9760 \text{ Mc/sec} \quad (107)$$

であつた。

(104) 式及び (106) 式を (103) 式に代入すれば

$$N_1 = 10.73 \quad (108)$$

となる。

(106), (107) 及び (108) を (102) 式に代入すれば

$$\Delta f_{cal} = 17.57 \text{ Mc/sec} \quad (109)$$

となつて、これは殆ど (105) 式の実験値と一致する。

(b) 同軸型可変 reactor を用いた場合。

前の場合と同様にして実験値は

$$\left. \begin{array}{ll} A_0 & = 25.82 \text{ db} = 382 \\ \Delta f_{exp} & = 12 \text{ Mc/sec} \\ N_0 & = 7.75 \\ f_0 & = 9760 \text{ Mc/sec} \end{array} \right\} \quad (110)$$

そして計算値は

$$N_1 = 7.7413 \quad (111)$$

$$\text{に対して} \quad 4f_{\text{cal}} = 10.74 \text{ Mc/sec} \quad (112)$$

となり、これも又実験値とよく一致している。

## 6. 結 言

上記の説明により、外部回路に変可変 reactor を用いた内部空洞型 Reflex Klystron 用増幅回路の動作原理が理論的にも大体明らかになったと思われる。

終りに終始御鞭撻、御指導下さった本学部長横地伊三郎先生を始め本学諸先生、殊に、中村・大脇両先生に感謝するとともに、実験及び数値計算に絶大なる御援助を給った藤縄賢一氏と、参考文献や書簡等により、種々御助言を下さった信州大学石田光夫先生、神戸大学藤沢和男先生、及び東芝の田中周三氏の各位に深謝する。

## 参 考 文 献

- 1) 岡部隆博: “Reflex Klystron を用いた極超短波増幅.” 1950 年 7 月 15 日 極超短波研究委員会報告.
- 2) 石井好隆: “X-band 受信用増幅器.” 電子工業 1954 年 12 月号. 工業資料社発行.
- 3) 石井好隆: “Reflex Klystron 723 A/B による極超短波増幅.” 1954 年 12 月 3 日. 日本大学工科学術講演会電気部会報告.
- 4) 石井好隆: “10000 Mc バンド 1-V-4 受信機.” 無線と実験 1955 年 1 月号. 誠文堂発行.
- 5) 石井好隆: “同軸型 Reactor を用いた Reflex Klystron 増幅器.” 昭和 30 年 電気通信学会秋季大会.
- 6) 宇田新太郎: “速度変調管” p. 64. 1949 年. 修教社発行.
- 7) 同上 p. 82.
- 8) 同上 p. 86.
- 9) 石井好隆: “同軸型可変 Reactor を用いた内部空洞型 Reflex Klystron 用再生増幅回路.” 日本大学工学研究所集報. 第 12 号. 昭和 30 年 11 月発行.
- 10) 田中周三: “同軸対導波管変成器の新しい等価回路と素インピーダンスの概念について.” 電気通信学会雑誌 昭和 27 年 12 月号.
- 11) 藤沢和男: “凹形空洞共振器の精密な L. C. R. 並列等価回路(補遺).” 電気通信学会雑誌 昭和 28 年 7 月号.
- 12) 藤沢和男: “凹形空洞共振器の精密な L. C. R. 並列等価回路.” 電気通信学会雑誌 昭和 28 年 4 月号.
- 13) Koryu Ishii: “X-Band Receiving Amplifier.” p. 202. Electronics, April, 1955 McGraw Hill.
- 14) 石井好隆: “Reflex Klystron は何故増幅するか.” 電子工業 1955 年 8 月号. 工業資料社発行.



# 本邦産トール油 レゼン分中の二、三の成分について

(1956 年 4 月 13 日受理)

伊 藤 舜 介\*

## Study on Some Kind of Resens of Japanese Tall Oil

By Shunsuke ITO

After the separation and purification of Japanese tall oil resens fraction by vacuum distillation, the author experimented on its three components and assured the properties and state of one component and found from its hydrogen chloride derivative that the component is  $\alpha$ -camphorene. Cis-stilbene was also verified by the ultraviolet absorption spectra of the second component, its isomer, and the properties of that isomer. Finally retene was assured by the properties of the picrate of the third component and its oxide.

### 1. 緒 言

トール油についてこれを工業的に利用するにはその成分性質を明らかなかにすることが必要である。この内本邦産トール油の脂肪酸等については当研究室に於て先に報告<sup>1)</sup>され、不ケン化物のステリン脂肪族アルコール<sup>2)</sup>および揮発性テルペン<sup>3)</sup>については著者が先に報告した。

今回は本邦産トール油中のいわゆるレゼンといわれているものの二、三の成分について研究した。このレゼン分は本邦産のトール油については報告がなく、外国産のそれについてもただスチルベン同族体が報告<sup>4)</sup>されてい

るだけである。

試料は前と同様赤松のみを原料としたトール油を用いた。不ケン化物は揮発性成分を除き固体部と液体部に分別し液体部を減圧蒸留により精製して、それらの性状および誘導体の性状をしらべて、 $\alpha$ -カンホーレン、シススチルベンおよびレテンを認めることができた。

シススチルベン はトランススチルベンに異性化して精製しさらに異性化してその紫外吸収スペクトルの特性などにより確認した\*。スチルベン同族体についてはトランス-3,5-ジメトキシスチルベン<sup>4)</sup>がトール油に存在することは知られているが本研究に於ては存在を認め

第 1 表

	留出温度/mm Hg	$n_D^{15}$	$d_4^{20}$	$[\alpha]_D$	四塩化水素誘導体 m.p.(°C)
$\alpha$ -カンホーレン*	158~165/4	1.5099	0.8891	-5	129~130
〃 6)	157~165/4	1.50339	0.8870	$\pm 0$	129~131

第 2 表

	留出温度/mm Hg	レテン m.p.(°C)	酸化物(レテンキノン) m.p.(°C)	レテンピクレート m.p.(°C)
レ テ ン*	180~210/3	99	197	125~126
〃 6)	390~394/760	99	197.5	123~124

\* 日本大学工学部 工業化学科油脂研究室。

1) 松本, 平井, 油脂化学協会誌 **3**, 270 (1954)

2) 伊藤 日大工研彙報 第13号 (1956)

3) 伊藤, 松本 油脂化学協会誌 **4**, 60 (1955)

4) H. Albrecht, E. H. Shurs; J. Amer. Chem. Soc., **76**, 603 (1954)

及著者等, 昭和 29 年 11 月 日化油脂討論会講演(名古屋)

\* 第 1 図参照。

5) 加福, 小山田西; 日化 **54**, 364 (1933)

F. W. Semmler, I. Rosenberg; Ber. **46**, 768 (1913)

6) T. Hasselstron, M. T. Bogert; J. Am. Chem. Soc., **57**, 1579 (1935)

\* は今回著者の測定したもので,  $[\alpha]_D$  はクロ、ホルム溶液

ることは出来なかつた。

$\alpha$ -カンホーレンは四塩化水素誘導体として分離確認した。なお  $\gamma$ -カンホーレンの存在を予想することが出来たが確認にはいたらなかつた。著者の分離した  $\alpha$ -カンホーレンおよび誘導体の性状を文献値と比較すると第 1 表のとおりである。

レテンはピクレートおよび酸化物の性状よりこれを認めることが出来た。著者の分離したレテンおよび誘導体の性状を文献値と比較すると第 2 表のとおりである。

## 2. 実験およびその結果

試料に用いたトル油は前回の報告と同様京都府福知山付近の赤松を原料にした製紙工場副産のもので、これを水酸化カリウム・エチルアルコールでけん化しエーテル抽出によつて得られる不ケン化物をさらに水蒸気蒸留によつて揮発性物質を除去する。この不けん化物より結晶部(主としてステリン分)を戸別して得た液体部を試料とする。

$\alpha$ -カンホーレン：前記液体部(濃褐色粘性で、揮発成分を除いた不けん化物に対して 49.2%)は、その 63 g $\gamma$  をクライゼンフラスコを用いて減圧蒸留するとつぎに示す各留分が得られる。(第 3 表)

第 3 表

	留出温度/4 mm Hg	収 量	$n_D^{20}$
留分 1	~160°C	11.1%	1.5041
" 2	160~190 "	23.1%	1.5239
" 3	190~200 "	11.1%	1.5252
" 4	200~210 "	8.5%	
残留分		約 40 %	

第 3 表の留分 1 および 2 を合して減圧下に再分留して b.p. 158~165°C/4 mm Hg の留分 10 g を得る ( $[a]_D = -5^\circ$ ,  $n_D^{20} = 1.5099$ ,  $d_4^{20} = 0.8891$ )。この留分をエーテル 20 C.C 溶液で塩化水素を飽和しドライアイスを用いて数日間冷却すると緊状結晶 0.2 g が得られる。この結晶はヘキサンより再結晶して m.p. 129~130°C を示す板状結晶 50 mg となる。塩素含有量, 33.9% ( $C_{20}H_{36}Cl_4$  としてこの計算値 33.91%)。このものを水酸化カリウム・エチルアルコールにて 7 時間加熱処理したものは淡黄色液体で過安息香酸法による二重結合数は 3.7 を示す ( $C_{20}H_{32}$  としての計算値は 4)。

これらの性状は  $\alpha$ -カンホーレン および 四塩化水素誘導体の文献値に一致する。

\* Rast 法

なお上記結晶の母液より m.p. 93~95°C の柱状結晶数 mg が得られる。これはその融点より  $\gamma$ -カンホーレン四塩化水素と考えられる。

イソスチルベン：上記の液体部の減圧分留により第 3 表の留分 1 および 2 から b.p. 145~155°C/4 mm Hg の留分 13 g が得られる。このものは淡黄色状物質で、そのエチルアルコール溶液の紫外外部吸収スペクトルは 222 m $\mu$ , 280 m $\mu$  に吸収極大を示す。この油状物理に臭化水素を加えて加熱処理した生成物(異性化物)をエチルアルコールから再結晶すると m.p. 124°C の結晶となり、そのエチルアルコール溶液の紫外外部吸収スペクトルは 226 m $\mu$ , 295 m $\mu$  ( $\epsilon_{226} = 12700$ ,  $\epsilon_{295} = 24700$ ) (第 1 図, A) に吸収極大を示す。分子量 \*177 ( $C_{14}H_{12}$  としての計算値 180, 2)。

分析実測値 C 92.81 %, H 6.57 %

$C_{14}H_{12}$  としての計算値 C 93.29 %, H 6.71 %

この異性化物は数時間紫外線照射すると液状にもどりその紫外外部吸収スペクトルは 222 m $\mu$ , 280 m $\mu$  ( $\epsilon_{222} = 21300$ ,  $\epsilon_{280} = 11700$ ) (第 1 図, B) に吸収極大を示す。

これらの性状はシス-スチルベンおよびトランス-スチルベンのそれに一致する。

レテン：第 3 表の留

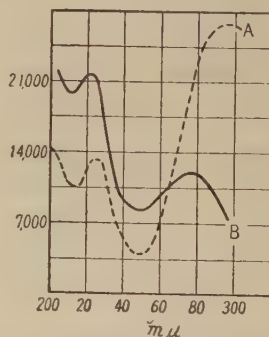
分 3, 4 および残留分を合して減圧下に再蒸留して 180~210°C/3 mm Hg の留分 11 g $\gamma$  を得る。これを熱メチルアルコールと加熱して不溶性の淡褐色粘性物質約 5 g を除き、可溶部はエーテル溶液で活性炭処理すると淡黄色固状物 3.2 g $\gamma$  と

なる。これをさらに熱希エチルアルコール(濃度 13%)で処理し不溶部をエチルアルコールから反覆再結晶すると m.p. 99°C の板状結晶 50 mg が得られる。分子量 231 ( $C_{18}H_{18}$  としての計算値 234.3)

分析実測値 C 92.25 %, H 7.53 %

$C_{18}H_{18}$  としての計算値 C 92.76 %, H 7.74 %

この結晶のピクレートはエチルアルコールより再結晶して m.p. 125~126°C を示す。つぎにこの結晶



A : トランス-スチルベン  
B : シス-スチルベン

第 1 図



25 mg を酢酸溶液で無水クロム酸を加えて2時間加熱して生成物をエチルアルコールから再結晶すると m.p. 197°C の淡黄赤色柱状結晶 6 mg が得られる。

これらの性状はレテンおよびレテンキノンのそれに一致する。

### 3. 結 論

本邦産トール油のレゼン分として、減圧蒸留によつて

精製しその性状および塩化水素誘導体より  $\alpha$ -カンホーレンを、紫外部吸収特性および異性化物のそれおよび性状によつてシス-スチルベンを、さらにピクラー特などの性状および酸化物のそれによりレテンをそれぞれ確認した。

この研究を行うにあたり御指導を載いた松本太郎教授に感謝する。

# 酸化エチレン縮合体に関する研究 (第3報)

## ヒドロキシエチルセルロース(2)

(昭和 31 年 4 月 21 日受理)

池 村 糺

### Studies on the Condensation Products of Ethylene Oxide (3)

By Tadashi IKEMURA

The author observed the influences of the reaction-temperature, time, pressure in the closed vessel, moles of ethylene oxide used, when ethylene oxide and alkali cellulose react in the gaseous phase. The author measured the surface tension and viscosity of the reaction products obtained by varying the above mentioned conditions and investigated the relation between the above factors and the yield of products.

1. The reaction rate of etherification in the gaseous phase is faster than that in the liquid phase, and the former method is better in that it does not require recovery of the solvent from the reactants.
2. When the reaction temperature is too low, the ethylene oxide is liquid and etherification reaction is not homogeneous, and when the temperature is high, the yield of reaction products decreases because of the accompanying side reaction. The author believes the optimum temperature is 20~30°C in the light of the experimental result.
3. The longer the reaction time, the higher is the etherification, but the reaction rate becomes slower after some hours. The result indicates that 7 hours is best.
4. The following results were obtained on the solubility in the solvents: H.E.C. dissolves in 2%~18% NaOH, KOH aqueous solution, but swells in water, methanol, ethanol, toluene and benzene, etc., and is insoluble in acetone, chloroform and carbon tetrachloride, etc.

## 1. 緒 言

前回において酸化エチレンとアルカリセルロースの液相反応につき報告したが、今回は気相反応につき述べる。これについては Schorger 氏の米国特許があるが詳細なる反応状況は不明である。著者は密閉器中において 10, 15, 20, 30°C の各温度又 5, 6, 7, 8, 12, 24 の各反応時間又アルカリセルロースと酸化エチレンとの割合を 1, 2, 3 の各モル数にした場合の実験を行い反応生成物の各種有機溶剤及び酸、アルカリに対する溶解性、粘度、表面張力、Morgan 氏法によるエーテル基の分析等行つた結果につき述べる。

## 2. 実験 法

### 1) 酸化エチレン及びアルカリセルロースの製造

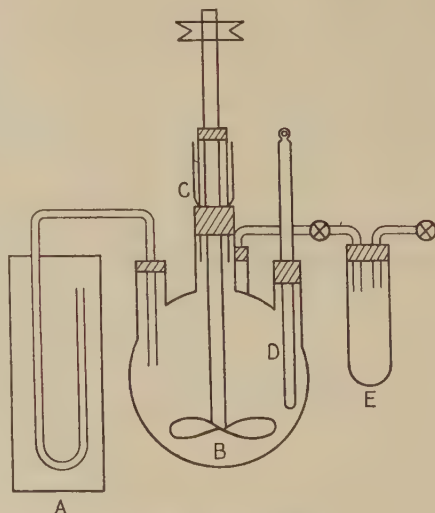
a) 酸化エチレン: 日本曹達 K.K. から恵与されたボンベのガスを氷冷液化して使用。

b) アルカリセルロース: 市販脱脂綿 18% NaOH 水溶液に 3 時間常温で浸漬、過剤のアルカリ液をフィルタープレスで压榨除去し、その重量を原料の 3 倍とする。繊維素 5%, NaOH 30%, H<sub>2</sub>O 55% となる。これを

4 時間粉碎し、一昼夜老成後反応に使用する。

### 2) 気相法によるエーテル化及び精製法。

酸化エチレンとアルカリセルロースとの反応を気相法



第 1 図 反応装置



により行つた。反応装置は第1図のようなものを使用した。

即ち四ツロフラスコ B 中に調製したアルカリセルロースを入れ、ポンプより氷冷液化して得た酸化エチレンを E に入れて置いてコックを調節しつつ酸化エチレンを導入する。A は反応容器中の圧力の増減を読むための水銀圧力計、D は反応温度測定用の温度計、C は気密用すり合せシールである。反応条件としては

- a) 温度: 10, 15, 20, 30°C.
- b) 時間: 2, 4, 5, 6, 7, 8, 12, 24 時間.
- c) 試料に対する酸化エチレンの使用量: 1, 2, 3, モルを選び、それらの反応生成物に就いて粘度、表面張力、有機溶剤に対する溶解度、及びエーテル化の進度を調べた。

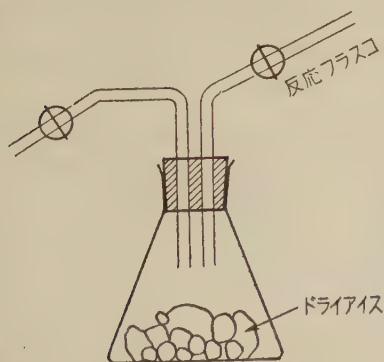
d) 圧力: 反応器中を減圧にして酸化エチレンを導入すると器中に圧力が掛るが酸化エチレンがアルカリセルロースに附加するに従い圧力は減少する故にこの状態を観測することにより附加反応の状態を知る事が出来る。圧力の変化と反応時間との関係より最適反応時間及び反応温度を求める方法を用いた。次いで反応器中を減圧にして酸化エチレンの一定量を導入する場合の導入時間と圧力との関係及び導入後の圧力の変化につき調べた。

**精製法:** 反応生成物をメタノール、醋酸エチル(2:1)の混合溶液中に入れフェノルフタレンを加えて赤変させ赤色が消える迄、無水醋酸を加えてアルカリを中和する。中和完結後汙過し、メタノールにて繰返し洗滌を行い乾燥する。

### 3) 分析 法

#### a) エーテル基の分析

前報と同様 Morgan 氏法に従つた。これに用いる  $\text{CO}_2$  ガスは固型炭酸を気化したものである。第2図に示したコ



第2図  $\text{CO}_2$  発生調節

ックの開閉に依り導入する  $\text{CO}_2$  の量の調節を行つた。

#### b) 粘 度

高精度試料の粘度は落球式によつて 1% 水溶液で測定し、中粘度及び低粘度の試料の粘度は毛細管法によつて 7% NaOH 溶液を溶媒として濃度 0.5, 1, 2% の 3 種類につき測定した。

#### c) 表面張力

7% NaOH 水溶液を溶媒として濃度 0.5, 1, 2% の 3 種類につき DuNouy の表面張力計で測定した。

#### d) 溶解性

種々の有機溶剤及び無機溶液に対する H. E. C の溶解性は製品の処理及び用途につき必要なので大凡の溶解度を調べた。その方法としては有機溶剤及び無機溶液 10cc を試験管に取り、これに試料 100mg を加え振盪しながら 24 時間放置後その結果を完全溶解、部分溶解、不溶解、分解及び膨潤に分けた。

### 3. 実験結果並びに考察

#### 1) 酸化エチレン使用量、反応温度、時間の影響

上記三つの因子に就き検討して見ると、

a) 反応温度が 10°C で酸化エチレンを 1, 2, 3 モル、5, 6, 7, 8 時間の各反応時間の場合は第 1 表に見られるように 3 モル、7 時間の表面張力が低く、3 モル、8 時間の時粘度が高い値を示して居る。同様にして 15°C の場合は第 2 表、又 20°C, 30°C の場合は第 3 表、第 4 表の結果が得られたがこれ等のうちでは反応温度 20°C にて反応時間 8 時間の場合、表面張力が最も低く、粘度は 20°C, 5 時間の場合が高い値を示した。この結果より、反応湿度は 20°C が適当と思われる。

b) 反応時間を 8 時間に保ち反応温度を 10, 15, 20, 30°C で反応させた生成物につき、Morgan 氏法に依つてエーテル基の分析を行つたが、同時に行つた表面張力及び粘度の測定結果から温度は 20°C のときが最も良い結果を示した。それで次ぎは反応温度 20°C に保つた場合の時間的变化を 2, 4, 6, 8, 12, 24 時間としてその時間に於けるエーテル化の適度を調べた。エーテル基を分析した結果かを見ると反応温度 10, 15, 30°C の場合、酸化エチレンの使用量が 2 モルより 3 モルの方が稍値が高く、又反応温度 20°C では 12 時間も 24 時間もエーテル化の反応は差が認められない。反応時間は長い程勿論エーテル化は進行するが 7 乃至 8 時間を選べば、それ以上の反応時間はそれ程有効とは思われない。

#### 2) 溶剤に対する溶解性

第 6 表に示すように酸化エチレンを試料に対し、1~3 モル使つた場合の反応生成物は一般にアルカリ溶液に

第 1 表 表面張力及び粘度測定結果 (10°C)

実験 番号	酸 エチレン モル数	反 温 度 °C	応 度 時 間 hr	表面張力 dyne/cm			粘 度 g/cm.sec		
				0.5%	1%	2%	0.5%	1%	2%
104	1	10	5	70.59	70.45	63.94	0.01982	0.02008	0.03845
105	1	10	6	68.74	68.63	63.34	0.03531	0.03552	0.05148
106	1	10	7	70.21	67.21	63.95	0.03151	0.03621	0.06145
107	1	10	8	70.33	68.72	62.19	0.02689	0.04183	0.07045
108	2	10	5	68.33	63.63	61.99	0.02209	0.03584	0.06078
109	2	10	6	70.58	67.59	61.81	0.02995	0.04985	0.06051
110	2	10	7	69.04	65.21	61.23	0.02201	0.03215	0.07215
111	2	10	8	69.21	64.68	59.83	0.02531	0.04377	0.04762
112	3	10	5	69.98	68.76	67.30	0.03063	0.06389	0.07321
113	3	10	6	69.91	67.54	59.90	0.02274	0.08016	0.07562
114	3	10	7	68.42	64.21	57.88	0.02451	0.07021	0.08510
115	3	10	8	66.61	64.79	58.94	0.02693	0.18853	0.48948

第 2 表 表面張力・粘度測定結果 (15°C)

116	1	15	5	68.56	68.10	67.94	0.03692	0.17126	0.17077
117	1	15	6	70.71	67.51	65.95	0.02963	0.11950	0.13659
118	1	15	7	70.45	69.21	64.34	0.05376	0.12461	0.14236
119	1	15	8	70.43	64.07	62.53	0.04260	0.32537	0.48245
120	2	15	5	70.86	66.58	63.97	0.06022	0.15573	0.40779
121	2	15	6	70.89	68.24	64.68	0.10472	0.13171	0.44884
122	2	15	7	70.18	68.12	67.97	0.05232	0.18339	0.50169
123	2	15	8	69.63	64.90	63.46	0.06526	0.18329	0.30858
124	3	15	5	68.93	64.85	63.19	0.06523	0.19280	0.19534
125	3	15	6	70.59	66.24	60.10	0.07061	0.17738	0.52917
126	3	15	7	70.72	68.52	63.94	0.11544	0.34066	0.48998
127	3	15	8	70.42	67.04	65.09	—	—	—

第 3 表 表面張力・粘度測定結果 (20°C)

128	1	20	5	69.52	65.42	63.29	0.03806	0.07241	0.12510
129	1	20	6	68.42	64.24	60.31	0.06098	0.47757	0.62827
130	1	20	7	70.84	66.28	62.63	0.04018	0.46500	0.31310
131	1	20	8	69.13	64.38	58.44	0.04672	0.48551	0.51458
132	2	20	5	70.72	63.21	62.65	0.04676	0.22887	0.87290
133	2	20	6	70.54	64.35	59.29	0.03429	—	—
134	2	20	7	68.49	63.01	59.99	0.03985	0.12592	0.50365
135	2	20	8	66.09	64.31	57.46	0.03210	0.35473	0.51576
136	3	20	5	69.81	68.31	64.80	0.02975	0.14905	0.17449
137	3	20	6	68.15	67.51	65.13	0.03063	0.10995	0.12374
138	3	20	7	66.87	63.01	59.29	0.03326	0.13735	0.21119
139	3	20	8	65.82	63.80	55.20	0.02452	0.11373	0.19567

第 4 表 表面張力・粘度測定結果 (30°C)

140	1	30	5	68.01	66.24	63.33	0.02446	0.06143	0.07511
141	1	30	6	67.45	67.02	62.26	0.04406	0.06893	0.06632
142	1	30	7	68.24	65.02	63.46	0.02332	0.07744	0.10573
143	1	30	8	69.51	66.42	63.46	0.02116	0.07410	0.10933
144	2	30	5	69.01	67.02	61.79	0.13282	0.13301	0.22830
145	2	30	6	68.72	66.51	60.92	0.03347	0.09670	0.18451
146	2	30	7	68.56	65.24	62.97	0.03137	0.12256	0.16429
147	2	30	8	67.66	61.69	61.28	0.02315	0.08395	0.03033
148	3	30	5	69.07	66.41	61.90	0.02529	0.12991	0.11955
149	3	30	6	68.02	67.08	62.95	0.02841	0.08875	0.11447
150	3	30	7	65.02	64.27	60.65	0.02656	0.06526	0.07040
151	3	30	8	66.90	65.63	59.28	0.02140	0.09155	0.10970



第 5 表 エーテル基分析結果

実験 番号	酸 化 エ チ レ ン (モ ル 数)	反 応		分 析 結 果		
		温度 °C	時間 hr	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> として の C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> O (%)	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> I とし ての C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> O (%)	総 計 (%)
152	1	10	8	0.48	4.79	5.27
153	2	10	8	0.63	10.75	11.38
154	3	10	8	1.02	9.40	10.42
155	1	15	8	0.96	7.59	8.55
156	2	15	8	0.45	11.78	12.23
157	3	15	8	0.42	11.40	11.82
158	1	20	5	0.87	7.03	7.90
159	1	20	6	0.22	4.48	4.90
160	1	20	7	0.23	6.26	6.49
161	1	20	8	0.62	5.68	6.30
162	2	20	5	0.57	11.03	11.60
163	2	20	6	0.13	10.03	10.16
164	2	20	7	0.26	12.22	12.48
165	2	20	8	0.39	12.73	13.12
166	3	20	2	0.14	5.66	5.80
167	3	20	4	0.12	8.39	8.51
168	3	20	5	0.32	6.70	7.02
169	3	20	6	0.31	11.54	11.85
170	3	20	7	0.20	9.15	9.35
171	3	20	8	0.49	12.21	12.70
172	3	20	12	0.15	13.59	13.74
173	3	20	24	0.01	14.31	14.32
174	1	30	8	0.55	5.92	6.47
175	2	30	8	0.57	12.89	13.46
176	3	30	8	0.63	10.19	10.82

溶解するが、塩酸では分解し、水、アルコール類には膨潤、有機溶剤には不溶性である。

### 3) 反応器内の減圧度の影響

酸化エチレンとアルカリ繊維素とを密閉器中で反応すると、反応が進むに従って器内の圧力が低下するが、この圧力の変化は反応進行の一つの指標となるので、これを測って反応に最適温度との関係を求めてみた。試料に対し酸化エチレンを 3 モル用いて温度を 10, 20, 30°C と夫々変化せしめ、それらの温度に於ける圧力の変化を観測して両者の関係を求めて見た所、30°C が最適温度と思われた。これ等の関係を示したのが第 3 図乃至第 4 図である。

### 4. 総 括

ヒドロキシエチル繊維素の製法の一つとして酸化エチレンとアルカリ繊維素とを気相で反応せしめた場合の温度、時間、密閉器内の圧力、酸化エチレンの用量等の影響を観察した。これ等の諸条件で種々変えて得た反応生成物中のエーテル基を分析して上記の諸因子とは生成物の得量との関係を検べた。

1) 気相に於ての反応は液相に於ける反応に較べエーテル化反応の速度が速かで、且つ反応物中から溶剤の回収

第 6 表 溶 解 性 (其の 1)

溶 剤	試 料	115	127	131	135	139	151
2 % NaOH		S	S	S	S	S	S
5 % NaOH		S	S	S	S	S	S
7 % NaOH		S	S	S	S	S	S
10% NaOH		S	S	S	S	S	S
18% NaOH		S	S	S	S	S	S
2% KOH	P S	S	S	S	S	S	S
5% KOH	S	S	S	S	S	S	S
10% KOH	S	S	S	S	S	S	S
18% KOH	S	S	S	S	S	S	S
5% Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	S	S	S	S	S	S	S
10% Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	S	S	S	S	S	S	S
HCl	D	D	D	D	D	D	D
H <sub>2</sub> O	H	H	H	H	H	H	H

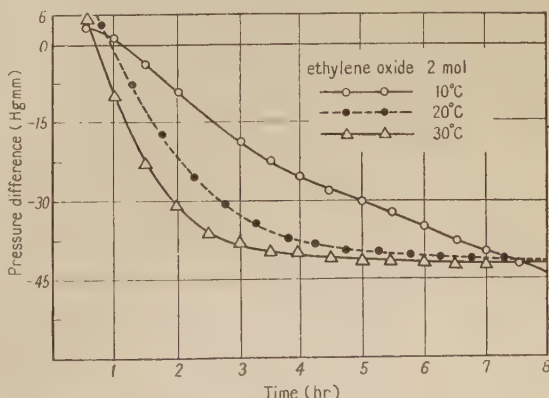
(其の 2)

メ	タ	ノ	ー	ル	H	H	H	H	H	H
エ	タ	ノ	ー	ル	H	H	H	H	H	H
ア	セ	ト	ル	ン	I	I	I	I	I	I
ク	ロ	フ	素	素	I	I	I	I	I	I
四	塩	化	炭	素	I	I	I	I	I	I
二	硫	化	炭	素	I	I	I	I	I	I
キ	シ	ロ	ー	ル	I	I	I	I	I	I
ト	ル	オ	ー	ル	H	H	H	H	H	H
石	油	エ	ー	ル	I	I	I	I	I	I
ア	ン	モ	ニ	ア	I	I	I	I	I	I
氷	酢	ル	酸	ル	I	I	I	I	I	I
醋	エ	ル	ル	ル	I	I	I	I	I	I
醋	ブ	ル	ル	ル	I	I	I	I	I	I
ベ	ン	ル	ル	ル	H	H	H	H	H	H
メ	チ	ロ	ラ	イ	I	I	I	I	I	I
チ	レ	ク	ロ	イ	I	I	I	I	I	I
ル	イ	ド	イ	イ	I	I	I	I	I	I
酸	メ	チ	ル	ル	I	I	I	I	I	I

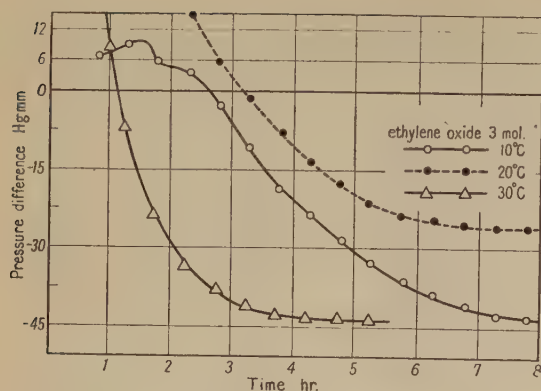
S.....溶解。 P S.....部分溶解。  
I.....不溶解。 H.....膨潤。  
D.....分解。

の必要性がない点で優れて居るようである。

2) 反応温度が低く過ぎると酸化エチレンが液化して、そのためエーテル化反応が均一性を欠き、又逆に高い場



第 3 図 反応器内の減圧の変化(2mol)



第4図 反応器内の減圧の変化(3 mol)

合は副反応を件つて目的物の生成率が落ちるが著者の実験結果より見ると温度は 20~30°C が適当と思われる。

3) 反応時間は長い程エーテル化度も高いが、或る時間以上はその進捗緩慢で7時間が最適と考えられる結果を得た。

4) 溶剤に対する溶解性は 2~18% NaOH, KOH 水溶液に溶解するも水、メタノール、エタノール、トルオール、ベンゾール等には膨潤しアセトン、クロロホルム、四塩化炭素等には不溶解の結果を得た。

本研究にあたり御懇切なる御指導を賜わつた庄野博士、三羽博士に深く感謝する。

### 引用文献

- 1) A. W. Schorger and. M. L. Shoemaker: Ind. Eng. Chem. **29** 114 (1937).
- 2) S. G. Cohen, H. G. Hsaland, L. Farney: Ind. Eng. Chem. **53** 200 (1953).
- 3) Paul. W. Morgan: Ind. Eng. Chem. Anal. Ed. **18** 500 (1946).
- 4) W. E. Gloor, B. H. Mahalman and R. D. Ullsich: Ind. Eng. Chem. **42** 2150 (1950).
- 5) A. M. Eastham: J. Chem. Soc. II 1936 (1952).
- 6) S. G. Cohen, H. C. Hass: J. Am. Chem. Soc. **72** 3954 (1950).
- 7) A. W. Schorger: U.S.P. 1863208 (June 14, 1932); 1914172 (June 13, 1933); 19412768 (Dec. 26, 1933)
- 8) Hubert: J. Soc. Chem. Ind. **42** 348A (1923).
- 9) G. P. 363, 192 (1920).
- 10) 池村 糺: 日大工学研究所彙報. No. 13.
- 11) 池村 糺: 日本化学会 9 年会講演要旨.

# 土の毛管系とその特性に関する実験的研究<sup>1)</sup>

(1956 年 7 月 11 日受理)

浅 川 美 利<sup>2)</sup>

## Experimental Study of the Capillary System and its Characteristics in Soils

By Mitoshi ASAKAWA

In all branches of the soil mechanics, it is important that we know capillary systems or capillary characteristics of soil. But it is a very difficult question to discuss, since capillary systems of porous materials such as soil have many complex elements.

The author discusses some capillary characteristics of soil based on results of electric resistance and permeability test.

In these studies, it is assumed that the capillary condition of soil consists of idealized capillary systems, which are equivalent radius and uniform distribution.

The results indicate that soil gradation or size directly affects void, electric resistance and permeability.

The characteristics of gradation were considered to have close relations to the capillary properties of soil.

### 1. 緒 言

土の毛管系及びその性状を正確に知ることは土質力学に関するあらゆる部門において極めて重要なことでありながら、実際には土のような多孔材の毛管系は非常に複雑な構造をもつために、その性格等を適確につかむことはむづかしい問題である。

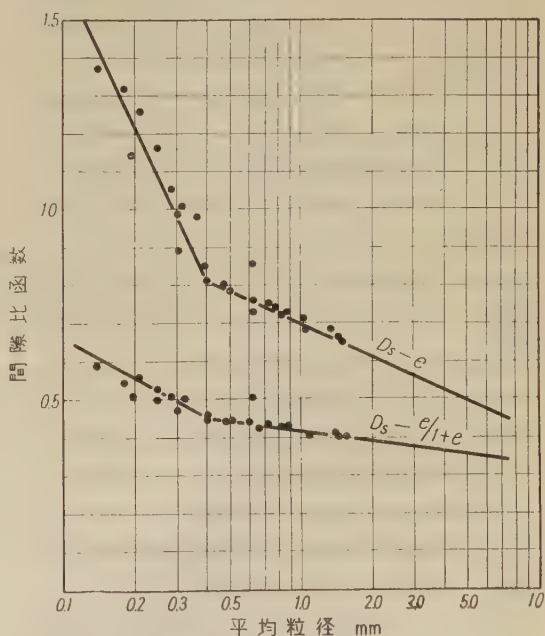
筆者は界面電気現象に関する応用として、上記の問題を実験的に取扱つてみた。この取扱いの結果は、勿論決定的なものが得られたわけではないが、土が理想的な毛管系をもつという仮定の下では、毛管の規則性や特性が土の粒度によつて表わされるといえる。

この研究は土に対する界面電気化学的な取扱ひとしての一つの試みで、これを報一報とする。

### 2. 粒子の大きさと間隙量

土の毛管は、その土が有する間隙の量と間隙の大きさによつて性格づけられるものであるから、毛管そのものについて考える前に先ず土粒子の大きさと間隙の量との関係について考察した。

自然乾燥した粒径 2.0, 0.85, 0.40, 0.25 及び 0.11 mm の 5 種の砂をいろいろな配合率で混合し、一定の容器に一定の高さから自然流し込みを施し<sup>3)</sup>、個々の混合砂の平均粒径に対する間隙比及び間隙率の値を打



第1図 平均粒径と間隙比及び間隙率との関係

点したものが第1図に示すものである。

それによると、明に間隙量は平均粒径の増減によつて規則的な変化を示す。すなわち間隙量は平均粒径が小さ

1) 第7回日本工学会大会土木部会(1956. 5. 27, 於早稲田大学)にて発表

2) 日本大学助手 工学部土木工学科

3) この方法は砂の間隙最大( $e_{max}$ )となる compact 効果を意味する。



くなるに従つて増加する。これらの関係において興味ある結果は、平均粒径の 0.4 mm 附近を境として直線関係が急に変換を示したことである。

目的と方法は異にしたものであるが、日大栗津助教授の研究結果にも、自然河川砂の場合の配合率と平均粒径及び間隙比の関係において、この粒径附近にてそれらの間に変換があるという類似のものが得られている。

この事柄は後で述べる電気抵抗度にも影響し、その特性が反映されている。

### 3. 透水性と電気抵抗度との理論的相似性

土の間隙は連続的で、しかも等値半径を有する毛管が集合しているものと仮定し、流体がそれらの毛管中を圧力  $p = \gamma_w H$  の下で流れるものとする、Poiseuille の法則に従いその流量は次式で表わされる。

$$Q_k = an_p k_k i \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 $Q_k$  = 透過流量、 $k_k = K\gamma_w/8$   $\eta$ : 透水係数、 $K$  = 透過係数、 $\gamma_w$  = 水の単位重量、 $\eta$  = 水の粘性、 $n_p = e/1+e$ : 間隙率( $e$ : 間隙比)、 $a$  = 加圧面積、 $i = H/l$ : 動水勾配、 $H$  = 水頭、 $l$  = 試料厚(厳密には、毛管長さ)。

また同一試料で作った供試体に比抵抗  $\rho$  の電解液でその隙間を飽和したものに任意の一定電流  $I$  を加電するとき、その供試体の電気抵抗は、

$$R_a = K_r l \rho / a \dots \dots \dots (2)$$

で表わされる。

ここで、 $R_a$  = 供試体の電気抵抗、 $K_r = a/n_p$ : 電気抵抗係数、 $\alpha$  = 毛管曲率( $\alpha=1$  にて直毛管)、 $a$  = 加電面積。

(1) 及び (2) 式において  $n_p a = n \pi \bar{r}^2$  ( $n$ : 毛管数、 $\bar{r}$ : 毛管平均半径) と考えられるので、両式を整理すると、透水係数及び電気抵抗は次式のようになる。

$$k_k = Q_k l / n \pi \bar{r}^2 H \dots \dots \dots (3)$$

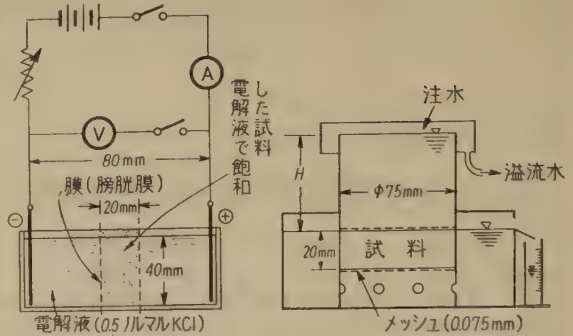
$$R_a = \alpha l \rho / n \pi \bar{r}^2 \dots \dots \dots (4)$$

(3) 及び (4) 式を比較すると、透水係数及び電気抵抗に影響する毛管条件は全く相似する。

従両者でつる決定には液条件及び加圧、加電条件を定めれば、毛管の透水性及び電気抵抗度を知ることができるといえる。

### 4. 測定装置と測定方法

透水試験には第 2 図(b) に示すような定水位装置によ



(a) 電気抵抗測定装置

(b) 透水試験装置

第 2 図 測定装置

り、水頭  $H$  のもとで試料( $\phi=75$  mm, 厚. 20 mm の円筒供試体)を透過する量及び速度を測つた。

電気抵抗測定装置は、第 2 図(a) のような電気透析装置の原理を利用して試作したもので、この電解槽は肉厚 5 mm、内辺 120×50×50 mm ガラス製で中央槽(試料挿入部)と左右液槽との三段割れになっている。その組立てには外側から 4 本のボルトで締めつけることによつて一槽となる。中央槽の両側には、挿入した供試体の崩壊を防ぐために膀胱膜を張り、それを両側の槽から押しつけるようにした。

電気抵抗の測定方法は、透水試験を行つたものと同一の試料を同じ間隙量となるように中央槽に入れ、0.5 ノルマルの KCl 溶液<sup>6)</sup>を注入し、試料を飽和せしめることと試料自身のもつ電気的性質を添加液の条件に近似せしめるために数時間そのまま放置した。

次に炭素板電極を左右液槽に入れ、それを一定間隔で固定し、液を一定温度となるように調節して(この場合 18°C) から、直流電流を 0.2, 0.5, 1.0, 1.2 アンペア等といったように、その強さを制御しながら対応するそれぞれの電解電圧を測定した。

求める試料の電気抵抗は、いわゆる供試体自身の抵抗  $4R_a$  (液の抵抗に対し、試料を挿入したために生ずる増加抵抗)であるから、増加抵抗を次のように考えて取扱つた。

供試体と同寸法の電解液の抵抗(実際には試料の崩壊を防ぐために用いた膀胱膜の抵抗も含む)は、 $R_e = l\rho/a$  であり、電解液で飽和された供試体の抵抗は(2)の理論式で表わされるものと考え、増加抵抗  $4R_a$  は、

$$4R_a = R_a - R_e = (K_r - 1)l\rho/a \dots \dots \dots (5)$$

- 4) 温度及び濃度を変えた溶液につき測定値の偏差等を調べたところ、0.5 ノルマル、18°C における KCl 溶液が電解液として最も妥当であつた(また表面電導による電流分を除くためにも濃厚液の使用は意義がある)。
- 5) 武井武編: 実験電気化学. p. 236 参照。

となる。また  $\Delta R_a$  を測定<sup>6)</sup> することによつて(2)式における電気抵抗係数  $K_r$  及び毛管わい曲度  $\alpha$  を次式から求めることができる。

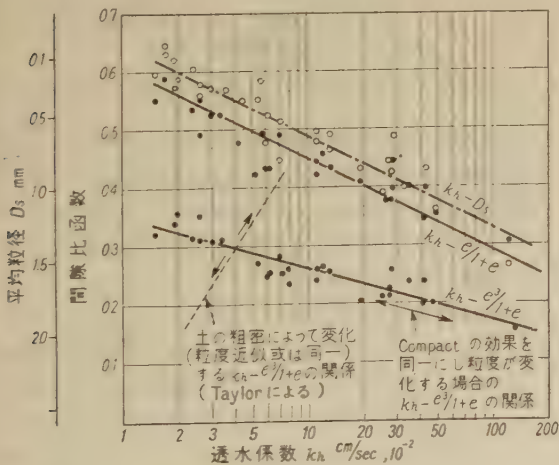
$$\left. \begin{aligned} K_r &= a/n_p = (a/l\rho\Delta R_a) + 1 \\ \therefore \alpha &= [(a/l\rho\Delta R_a) + 1]e/1+e \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (6)$$

## 5. 実験結果に対する考察

### (A) 透水性<sup>7)</sup>について

土の透水性は間隙量及び粒子の径の函数として表わされるということは目新らしき論述ではない。然し間隙量及び粒径の増減は必ずしも一義的にその透水性を表わすものでなく、むしろその量と大きさとの両者がそれを左右する要因となるといえる。例えば或る種の土或はそれに類似の粒度を有する土の間隙量と透水性との関係は、その状態に応じて正相関を示す(すなわち間隙量の増減によつて透水性がそれに正比例して増減する)に対し、いろいろの粒度の土についてのそれらの関係は逆に負の相関を示す(すなわち間隙量の増減によつて透水性がそれに反比例して増減する)。

このことは、前者では間隙の大きさ或は毛管の大きさが、土の粗密の度合によつて変る、いわゆる間隙の状態の変化によるものであり、後者ではその大きさが、量の大きなるに従つて毛管径が小さくなつてゆくという結果を

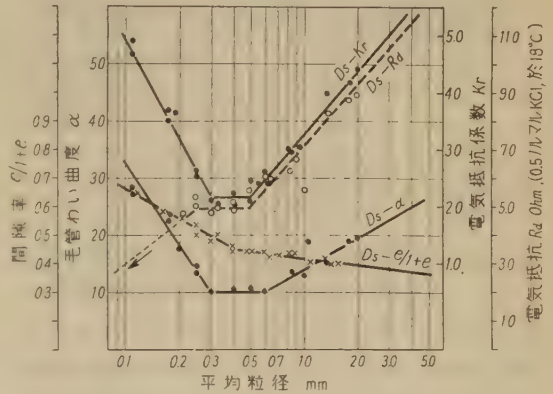


第3図 透水係数と間隙比函数及び粒径との関係

生ずる(第3図参照)ためと考えられる。

### (B) 電気抵抗度等について

図-4に示すものは、平均粒径に対する電気抵抗係数<sup>9)</sup>、毛管わい曲度及び実験に用いた電解液条件の下での電気抵抗等の関係である。



第4図 平均粒径と毛管わい曲度及び電気抵抗度等との関係

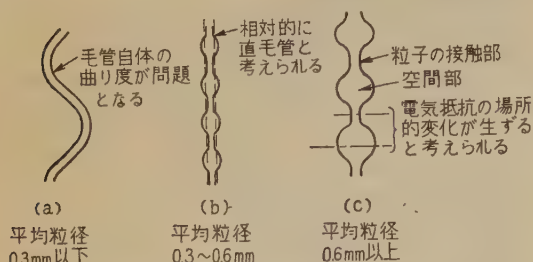
先づ平均粒径と電気抵抗係数( $D_s - K_r$ )との関係を見ると、 $K_r$ 値は、前に述べた平均粒径と間隙量との関係における変換点をよく反映しているように思える。すなわち平均粒径が0.3~0.5 mmにて  $K_r$  値の変換を示し、その範囲以下に粒径が小さくなつてくると  $K_r$  値が急に増加してゆく。また逆にその範囲以上に粒径が大きくなるに従つて丁度反対の方向に  $K_r$  値が増してゆく。

次に平均粒径と毛管わい曲度( $D_s - \alpha$ )との関係についてみると、この場合も両者の関係が上述と同じ傾向を示すものである。毛管わい曲度とは理論式(2)及び(6)に示すように毛管の曲りの程度を表わすもので、 $\alpha=1$ であるということは、その毛管が真直なパイプ状をなしていると考えられ、 $\alpha$ の値が大きくなるに従つて曲りが大きくなることを意味するものである。

結果によると、平均粒径が0.3~0.6 mmの附近では  $\alpha$  が1に近似していることから、この範囲の粒径における土の毛管は直毛管に近い、あるいは直毛管と考えても差支えないものと思われよう。それに対し、粒径がその

- 6)  $\Delta R_a = R_a - R_e = E_a - E_e / I$  (ここで  $E_a$ : 試料が電解液で飽和された状態における電解電圧,  $E_e$ : 試料と寸寸法の電解液のみの電解電圧,  $I$ : 一定電流強度。
- 7) ここで透水性は透水係数をもつて表わすものである。
- 8) (6)式における毛管長  $l$  は試料厚  $L$  と等しいと考えて取扱つた。事実上  $l=L$  と考えても差支えない結果を得た(後述)。
- 9) 理論式(2)で示した係数、すなわち  $K_r = a/n_p$  で便宜上電気抵抗係数と名づけた。この値は毛管の性格を示すもので、電氣量を与えるものではない。

範囲以上となるか、あるいはそれ以下となると、前者では粒径が大きくなるに従つて、後者では小さくなるに従つて毛管わい曲度が増してゆく。このことがらを説明するために筆者は第5図に示すような模型毛管を想定してみ



第5図 平均粒径による毛管形状の変化を想定した模型(実験から得た毛管曲り度に対する考察)

た。平均粒径が0.6 mm以上になつてくると(第5図(C))土粒子の接触せる部分と空間部分との隙間の差が相対的に大きく、それも粒径の大きくなる程その差が大きくなり、それを測定した場合、電気抵抗の場所的变化が大きく現われてくる結果によるものと考えられる。従つて粒径の大きい土の場合の毛管系では、毛管わい曲度として表われる値が毛管の曲り度合を意味するものであるというよりも毛管の平均半径の度合ということに意義をもつてくると思われる。

それに対し0.3~0.5 mm 附近の平均粒径をもつ土では(第5図(b))、粒子の接触部と空間部との差が相対的に小さくなく、直毛管をなすと考えても差支えない毛管系を構成する。

次にその粒径範囲以下の平均粒径を有するような土では、上述してきたような粒子接触部と空間部との隙間の差という問題を考えるよりも毛管自体の曲り度合が粒子の径が小さくなる程大きくなつて来るといつた、いわゆる毛管の曲りの度合について考える方が妥当性があるように思える。

平均粒径に対する透水性と電気抵抗(実験に用いた電解液条件における)とは第4図及び第6図からわかるように両者は全く同じ傾向(すなわち平均粒径の小さくなるに従つて透水係数及び電気抵抗は直線的に減少してくる)を示す。このことは理論式(6)に示した両者の相似性を論証するものであるといえよう。しかしこの場合も電気抵抗は0.3~0.5 mmの平均粒径附近にて変換性を

示した。

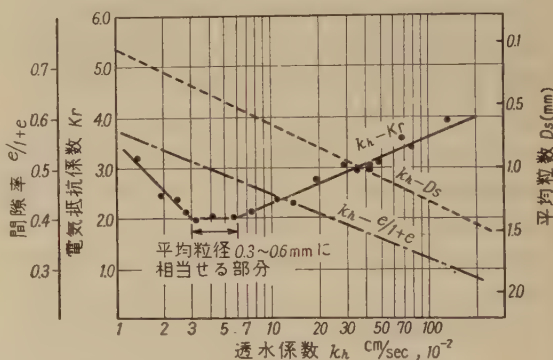
第6図の $k_h-K_r$ の関係は、個々の土の特性値 $K_r$ を知ることによつてその土の透水係数を知らうとして表示したものであるが、間隙率と毛管わい曲度とで表わされる $K_r$ の値は、前述の関係(粒径と間隙量との関係)をよく反映している。従つて $K_r$ 値を知つて $k_h$ を類推しようとする場合は、粒径による変換を考慮して取扱わねばならない。

(C) 毛管平均半径 $\bar{r}$ 、毛管本数 $n$ 及び毛管長さ $l$ の測定<sup>10)</sup>

土の毛管の等値平均 $\bar{r}$ は理論式(1)及び(2)を組合せて、次式のように表わされる。

$$\bar{r} = \sqrt{8 \eta R_a Q_h / \gamma_w H \rho} \dots \dots \dots (7)$$

(7)式は、土の電気抵抗度とそれを測定したときの電



第6図 透水係数と電気抵抗係数との関係

解液条件、及び透水試験による透水量、水頭及び透水時の温度による水の性質等を知ることによつて土の毛管の等値平均半径を与えるものである。

また透水試験によつて平均透水速度 $v_a$ を測ると次式から毛管の長さ $l$ を得る。

$$l = \bar{r}^2 \gamma_w H / 8 \eta v_a \dots \dots \dots (8)$$

(7)及び(8)式によつて $\bar{r}$ と $l$ とが得られるから、それらの値を次式に入れると毛管本数 $n$ が得られる。

$$n = l \rho / R_a \pi \bar{r}^2 \dots \dots \dots (9)$$

第1表に示すものは、数種の土について上述の式に実験から得た値をもつて求めた結果である。

それによると、毛管半径及び本数(数値は1 cm<sup>3</sup> 当りの本数を示す)は粒径の変化によつて著しく且つ規則的にその変化を示している。

10) これらの値は単一毛管系という仮定に基づいたもので、分布性、その他複雑な要因は考えに入れてない。

11) 間隙が全て連続的で、それによつて毛管が構成されているものと考え、 $n \pi \bar{r}^2 = a e / (1 + e)$ となるから、この考えに従うと $n = a e / (1 + e) \pi \bar{r}^2$ からも毛管数が得られる。



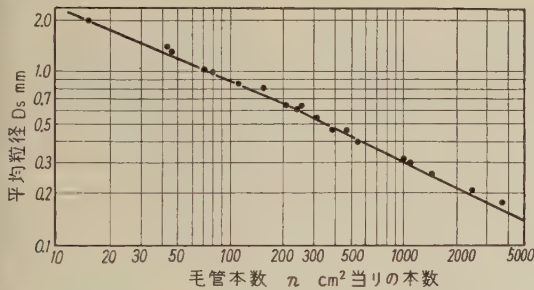
第1表 数種の試料に対する  $\bar{r}$ ,  $n$ ,  $l$  及び  $\alpha$  の実測例

試料 番号	平均 粒径 $D_s(\text{cm})$	間隙 比 $e$	間隙 率 $e/(1+e)$	毛管 半径 $\bar{r}(\text{cm})$	毛管 長比 $l/L$	毛管本数 $n(\text{本}/\text{cm}^2)$	毛管 歪曲 度 $\alpha$
1	0.20	0.70	0.31	0.078	(2.03) 1.02	16.3	1.90
2	0.143	0.82	0.45	0.056	(2.20) 1.10	46	1.39
3	0.063	0.99	0.50	0.025	(2.25) 1.09	254	1.16
4	0.033	1.36	0.57	0.012	(2.25) 1.13	1267	1.38
5	0.018	1.42	0.59	0.007	(2.15) 1.07	3831	2.75

註-1) 電解溶液は、KCl (0.5 ノルマル), 於 18°C.

註-2) 表中 ( ) の数値は、毛管長  $l$  を示す

註-3)  $d$  は試料厚 (20 mm).

第7図 平均粒径に対する  $1\text{cm}^2$  当りの毛管本数

表中毛管比  $l/L$  とは、実験から求めた毛管長さに対する試料厚さの比で、それらの結果には粒径による毛管長さの影響は殆んど表われず、したがってどの粒径の場合も毛管長さは試料厚さに等しいと考えて差支えないといえる。

以上の結果は、測定、取扱い及び試料自体の均一性の問題等から考えても無理な点があるので、それらが示す値は決して定量的なものでないが、土の平均的粒径によつて変化する毛管の性状や規則性は充分情報されていると思える。

## 6. 結 言

以上は、土工物の排水、凍上、透水性等といったいわゆる土の水に対する物理的な性質に関連して重要とされている毛管の性状及びその粒度等による特性を、土の毛管があくまでも理想毛管系であるという仮定のもとで界面電気化学的及び界面物理的に取扱った実験結果を報告したものである。

結果を総合してみると土の毛管系につき次のようなことがいえる。

(1) 平均粒径が  $0.3\sim 0.6\text{mm}$  の範囲を中心に間隙の量及び界面性状に、(その範囲を超える粒径とそれ以下の粒径の土で)変換を示す。

(2) 電気抵抗度(液条件の判明せる場合)或は電気抵抗係数を知ると相関から透水係数を近似的に類推することができる。

(3) 電気抵抗度と透水係数とは、毛管条件が理論的に相似であることがいえる。

(4) 電気抵抗試験及び透水試験結果から、毛管の等値的な平均半径、単位面当りの毛管本数及び毛等長さ等の近似量を知ることができる。

(5) 毛管の平均半径及び毛管本数は、土の平均半径に対し規則的に変化する。

これらの一連の実験においては、用いた土が比較的清純な砂を人工的に配合した試料で、それによつて得た結果を論じたままで、全ての土に対する毛管にそれが適合するものであるかどうかはいえない。また電気的な取扱いにおいては僅かの要因が試料中及び液中に生じてもその結果に非常に大きな影響を与えるから、これらの問題についても更に検討を要するものである。

本研究において細部に亘つての御丁寧な指導を賜つた日大当山教授に深謝の意を表すると共に、実験に協力された当時日大学生中川実(秋田県庁)、武田義男(防衛庁)両君に謝意を述べる。また装置及び測定等に関して御指導をあをいだ日大工業化学科の黒柳研究室の皆様へ深謝する次第である。

この一文を故巻内一夫先生の霊前に捧げる。

## 参考文献その他

- 1) 武井武編: 実験電気化学 p. 326~330 及び附表.
- 2) 駒形作次: 界面電気化学概要 p. 11~75.
- 3) 小栗捨蔵: 応用コロイド化学 p. 311~318.
- 4) 当山道三: 土質力学(教材プリント), p. 50~60.
- 5) 栗津清蔵他: “Quick-sand に関する実験” 1955.5. 土木学会第 11 年年次講演会発表概要他.
- 6) W. Taylor: Fundamentals of Soil Mechanics p. 99~123.
- 7) Leo Casagrande: (a) “Electrical Stabilization in Earthwork and Foundation Eng.” 及び (b) “Electro-Osmosis”  
(a): Proc. of the Conf. on Soil Stabili. P.84~106., (b): Proc. 2nd. Int. Conf. on Soil Mechanics Vol. I, p. 223.
- 8) 浅川美利: “土の毛細管系及び透水性に関する界面電気化学的研究” 第 7 回日本工学会大会土木部講演会にて発表(1956.5.27., 於早稲田大学)

# 試錐機用管継手部位の研究<sup>1)</sup>

(1956 年 7 月 26 日受理)

抜 山 大 三<sup>2)</sup>

## A Method of Strengthening Rod-Couplings of Boring Machines Used in Mineralogical Surveys

By Daizo NUKIYAMA

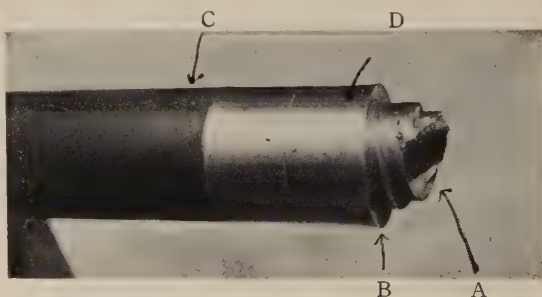
To find a method of strengthening rod couplings of boring machines, the author classified the defects, which can be determined during the use of the machine, into three kinds. A suitable combination of remedies for these deficiencies led to the desired method. The method should be evident in Fig. 9 of this paper.

### 1. 問題の説明及び観察

試錐機用の管は、地中深いところにある岩石に径 2 吋程度の穴を開ける為に使用する導管であるが、この管は又冷却用の水を管内に流し込み、先端にある「ダイヤモンドダイス」の部分の過熱を防ぎ温度を低めるに役立たせてある。一方、管は継手によつて先端を深さ数百米のところにも達せしめるので種々の理由により、軽量である必要があり、しかも、その軸の周に毎分数千回にも及ぶ回転をなさしめ、動力を送り、先端にて希望される仕事である穴をあけるのであるから、相当大きな「ねじりモーメント」に耐え得る管である特性の必要が起つて来る。しかし、一本の管の長さは 3 m なので多数の継手を使用せねば所用の長さの管にならないから、この導管の一部をなす継手部位の強化の問題を考えるのは重要である。しかし、継手は、管の一部であるから又管の型式を持ち水を通す導孔のある必要があり、大きな「モーメント」を伝達する役目を為さなければならない。又大きな重量を引き上げ、あるいは、降下させる時の十分な強さも必要であり、しかも岩石へ開ける孔は必ずしも垂直下方とは限られず上方にも、又斜めにも向けられて開けられるので管は重力の方向と零から 180° まで傾いて使用される事が起り得る。ただし、斜めの時には孔の側壁によつてささえられ、その部位に大きな摩擦のある事が考えられるのである。これ等の事情から継手の外径は他の管の部分、特にダイヤモンドダイスの装着された部分の外径より大とする事は出来ない。

以上の条件の下にある継手は内径はもとより外径も又継手として使用されるために切られた、ねぢの時当りの山の数、山の高さ等全部が、あまり変化させ得ない量と

なつて来るのである。しかし他方この継手のところが管のうち、最弱のところとなり、多くの故障の原因を作っているのが現状であり、この点の改良を考えようとするのがこの研究である。しかし、継手自身は割に小型であるため良質な鉄を使用し強度を増す手段が取り易いのであるが、管の方はこの自由度が価の問題と関連してあまりない。従がつて多くの故障は、この継手の部位における管に起つている事も事実である。又管端をやや厚手に作り、ねぢ切りにより弱まる事を除去する方法も取られるのであるが管の価が高くなる事と管の内径が小となる事であまり望ましい変化ではない。



第 1 図 雄ネジの捻じ切られた例

以上のような特種条件にて実際に起る故障の様態を説明してみる。第 1, 2, 3 図に故障の起つた実物の写真が掲げてある。第 1 図では継手に切られた雄ネジが A において、捻じ切られており、このネジの基部 B はややふくらみが見られるが他方の雌ネジの切られている管は何等の損傷も見受けられなかつたものである。又継手を作る時の切削の跡 D は直線状に平行線を見せ、これ又何等のねぢれた跡も見せていない。ここに A なる断

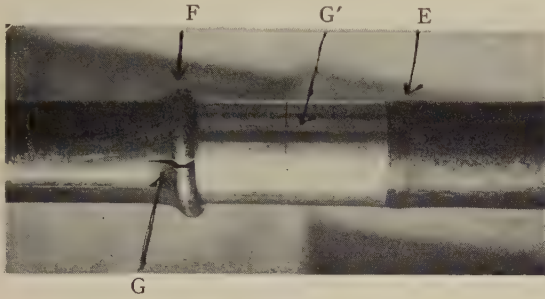
1) この研究は鉱研試錐工業株式会社の本山博康常務よりの依頼により行なつたものである。

2) 日本大学工学部教授。



面は雌ネジによる強度の分布が単純円錐のものとは異なる事を併せ考えれば、ねじ切られと張力による引きちぎられの加えられたものである事は B 部の脹らみと併せ考え合理的に理解されるものである。

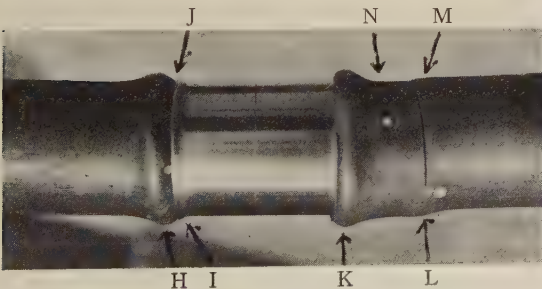
第 2 図においては管の端近く E に少々脹らみを見せ、このふくらみは他の端 F において、はなはだしくなり管の G なる部分に裂け目が入っている。この裂け目は



第 2 図 雌ネジの損傷を受けた例 1

F なる脹らみより後に出来たものである事は裂け口の型から推測出来る。しかもこの裂け口は管の円周方向の張力によるものである事は裂け口が管の表面と  $45^\circ$  に近い独特な角度を為している渦曲面を形成している事からも認知出来る所である。又普通の目測では第 1 図の場合と同じく管の部分には少しの振れもないといつて過言でない。

第 3 図においては管の雌ネジの先端近くの H のふくらみは第 2 図の F より、なお初期に見えるが同型にふくらんでおり、継手は L において外方に張り出ている。この点第 2 図の F の場合と異なっている。J にて管と



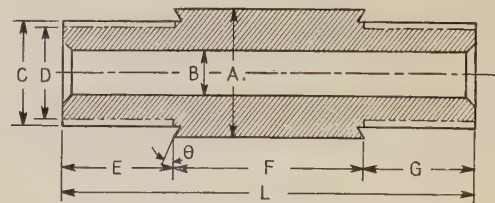
第 3 図 雌ネジの損傷を受けた例 2. 及び雄ネジ上に雌ネジが「カプサル」様に伸上つた例。

継手が密着している事が充分に見られるが K にては管の雌ネジの先端は継手におおいかぶさつた型のふくらみの様相を示しており L なる裂け目は管に切られた雌ネジの基部に出来ている。この裂け目は管に張力の加えら

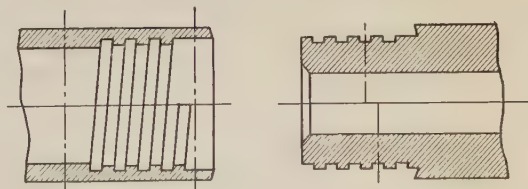
れたためである事は、M の部分は殆んど何等の変形も受けていないにもかかわらず、N の部分が引き伸ばされやや細くなっている事から充分知り得るのである。以上が実際に起る故障であり、これ等を如何に取り除き得るかが、ここに考えようとする問題であつて種々な条件の下での故障除去方法が得たいのである。しかして継手の故障は材質として良質の鋼を使用して簡単に少くしているのが現在である。

## 2. 継手部位の設計

第 4 図及び第 5 図に継手部位の設計図が示されており第 1 表及び第 2 表に第 4 図及び第 5 図の各必要部位の寸法が掲げてある。これ等の中の一部は、必要に応じて作り替えられたものであつて公式等により求められて変化して来たものではない。従つて一貫性のある寸法でない事は止むを得ないのである。従つて管は強くなし得なかつたが、例えば継手そのものは断面積を大きくして強度を増しているのである。この事は他方通水が悪くなるのであるが、その点はこの部位の通水路の長さが短かいので全体として大した影響なしとしたものである。又著者の意見としては「ロッド」の先端「ダイヤモンド・ダイス」の近くの所の事を考えれば通水に対する抵抗は、さして心配する必要はないのである。すなわち、この部位における通水抵抗は非常に大きいのであつて継手部位の通水抵抗等は今日の状態では問題にする必要はないと考える。なお、実際には、この部位の材質を良好な鋼にして見てもいるのであるが加工等に問題点が出てきて何処までも良質のものを使用するというわけにもゆかないのである。かくて設計には各種の束縛のある事を知らねばならない。



第 4 図 継手部位の設計図(1)



第 5 図 継手部位の寸法を与えるための図(2)

### 3. 物理学的説明

前節までを通観して得る結果は、次のように幾種類かの物理学的説明により説明される現象である。

**第1種:** 先ず継手のネズをねぢ込んでいつた時、雄ネズの頭が雌ネズのネズを切つてないところへ突き当つて、いわゆる胴づきとなつた時。

この時も摩擦力を排除して、なおネズ込もうとすればネズ山を通して雄ネズは圧力を、雌ネズは張力を受ける。一定度をこの張力が越せば、例えば第3図のLのように雌ネズは切断されてしまう、この切れ口は胴づきで抑えたところと張力で引かれた所の間で最も大きな張力を受けたと考えられる場所で起つている。しかし、この関係は、M及びN部を充分比較すればMでは張力が無く、Nではそれが非常に大きかつたのを明瞭に知る事が出来る。ただし第3図において、かくのごときところまで雄ネズがねぢ込まれたことに関して、ここでは雌ネズのK部が継手の上にまで移動し得る様に充分ふくらんだためである事も注意されねばならない。しかし雄ネズが雌ネズに対し充分長ければK部のふくらみは起らず、雌ネズの先端が雌ネズの基部に当る前に胴づきが起る筈であり、それに引きつづきLのような裂け目が胴づき及び続いて引起される張力の為め出来る筈である。

**第2種:** しかし一種の特別な場合として若し裂け目が出る為めに必要な張力の起る前に雄ネズに加えられる圧力及びネズの偶力が充分大となり第1図のようなネズ切れも起る可能性がある。

この現象の起る部位は、雄ネズとして最大の圧力と偶力が最少の断面と一致したところにとり得る事が出来る。ただし、このねじ切れの現象は逆に張力と偶力が最少の断面と一致した所にも起り得る事は胴づきを合わせ考えたと同様に雌ネズの先端と雄ネズの基部が先ず当る事を併せ考えて理解し得る現象である。すなわち雄ネズのねじ切れには二つの場合が考えられるのであり、その切れ方は圧力、張力の差によつて多少、異なつてゐる筈であり、第1図のものは張力と偶力に依るものである事はBなる基部の変形からも知られることである。しかし、雄ネズの側にのみこのネズ切れがあつて雌ネズの側にはないという事におも疑問とする所が残されるのであるが、この点は多分ねじりに対する強さが雌ネズの方が相当、大である為めであらうと考えられる。

**第3種:** 次は第2図のように変形する場合であつて雄ネズの胴づきは遅れて起る場合であり雌ネズの先端が先ず雌ネズの基部にあたり、なお回転モーメントが強

く作用してEなる状態より更に進んでFとなり、終りにGなる割れ目の出来る頃、初めて胴づきが起るような条件の場合である。

この事は、雌ネズが雄ネズより充分長く切られており、その上雌ネズの圧力に対する限界抗力が雄ネズの張力に対する限界抗力より弱い場合に起こる。

しかして第2図におけるG'に見える傷は初めから存在したと考えられるものであつて、他の削り跡は線状で管軸におよそ並行しており、何らねじられた様相は見られない事を反省する必要がある。

この時の状態を与える微分方程式は後に述べる適当な簡便化によれば

$$\frac{d^2}{dx^2} \left( EI \frac{d^2 y}{dx^2} + Fy \right) + \frac{2\pi Et}{R} y = 0 \quad (1)$$

である、ここに  $x, y$  は座標を示し  $x$  は管の軸方向に測られた長さであり、 $y$  は管がはじめの状態から管の中心軸より遠のいた長さ、すなわち半径の増加であり、 $E$  は弾性係数、 $F$  は圧縮力で  $I$  は考える点の特殊二次モーメント、 $t$  は管厚さ、 $R$  は管の平均半径である。

この式は、

$$\frac{d^4 y}{dx^4} + a^2 \frac{d^2 y}{dx^2} + b^2 y = 0 \quad (2)$$

ここに

$$a^2 = \frac{F}{EI}, \quad b^2 = \frac{2\pi t}{IR}$$

と書き改められ解は次式の型で与えられる、

$$y = A_1 e^{p_1 x} + A_2 e^{p_2 x} + A_3 e^{p_3 x} + A_4 e^{p_4 x} \quad (3)$$

ここに  $A_s$  は常数であり  $p_s$  は次の方程式

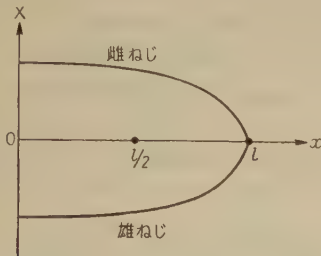
$$p^4 + a^2 p^2 + b^2 = 0 \quad (4)$$

の一般に存在する四個の根である。 $b^2$  なる項は管が圧縮力の為め、ふくらむ時におこる管の円周方向の弾性による抵抗力を原因とする項であるが、しかして  $b^2$  が零ならば、この解はオイラーの与えたものと一致する。さきに述べた  $I$  が特殊と呼んだ理由は、管の壁を管の中心線を含む多くの面で等分に分けて得た柱の管の直径の方向、外側へ曲がる場合に考えるべき二次モーメントが  $I$  の一部であつて、これを壁面全部について加えたものが先の  $I$  である。

### 4. 問題点の解析及び解

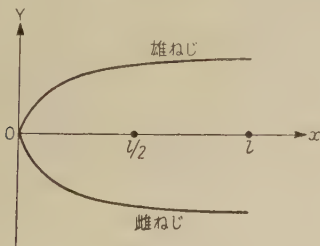
前節に書いた三つの場合が普通のあまり注意される事なく作られた接手の部位で起つてゐるものと考えられ、特に第3の場合が非常に多く起る場合であると見做し得る。すなわち、この種の場合が普通起る場合であることは、次のように理解できる。すなわち工場で管に切られた雌ネズの長さが継手の雄ネズより常に少し長く切られ

ようになるからである。次が胴づきが早く起る場合であるが両ネジ切りの長さの差がミクロン程度なら問題は別となる。しかして普通は 1mm 程度であると考えられる。ただし、この事は別に統計を取つて見たものではなく常識的の解析である。よつて、これら三つの場合を総合して継手の部位に起る力を図示してみると第 6 図、第 7 図、第 8 図のようになる。



第 6 図 普通継手部位に存在する力と位置の関係図

ここに縦軸は、両ネジの山と山との単位長さ間に作用する力によつて、起される管及び雄ネジ内の力  $X$  又は  $Y$  が圧力の場合を正として取られ張力の場合を負に取つてある。横軸には例えば雄ネジの基部より先端の方を正として位置を示してある。ただし、この図は説明図であつて実験結果ではなく、かくの如き張力、圧力の分布でなければならない事を示すものである。又、この図において雌ネジと雄ネジとを入れかえれば第 6 図から第 7 図と変り胴づきが先に起つた第二の事情となる。すなわ



第 7 図 胴づきのある時の継手部位に存在する力と位置の関係図

ち第 6 図と同じ量を取り第 7 図の説明図が作られたのである。両者共に曲線の型はネジの切られ工合によつて異なるのであつて、若し雄ネジと雌ネジの全面が一様に接しており、そこにおける圧力が又一様に分布されているならば、縦軸の  $X$  又は  $Y$  の値は  $x$  に無関係に  $x=l$  まで一定の値を持つべきである。ここに  $l$  なる値はねぢの切られている長さであつて雌ネジ雄ネジの長さが異

なる時には、その短い方の長さであり、あまり厳密な意味を持つていない。特にネジ山に変型の起る事等を考えに取れば  $X$  あるいは  $Y$  の値の決定は容易ではなくなつて来る。

しかし例えば  $X$  の値は雄ネジ雌ネジの母体である円筒部分に及ぼす  $x$  方向の力であつて、その値は  $x$  の特定値について一定であり、ネジ山で押し合う力の結果と見られ、 $x$  方向の積分を取れば管間の圧力、あるいは雄ネジに加えられる張力になるのである。しかし、これらの力の方向、合成等の実際は又かなり複雑であつて決定困難な問題となる。これ等最も簡単に考えてみたものが、(1)式における  $F$  の値で

$$dF = X dx \quad (5)$$

とし、しかも

$$\left. \begin{array}{l} F = Xl \\ 0 < x < l \end{array} \right\} \quad \left. \begin{array}{l} F = 0 \\ x = l \end{array} \right\} \quad (6)$$

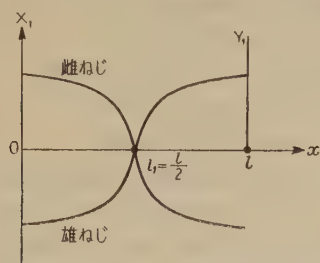
であつて  $F$  は  $x$  に無関係であると単純化したものであつた。しかし、これに近い現象は、又実際に起つていると考えても大差ないので、およその特性を知るために先の式を作つたものであつた。もし、忠実に実際起る状態を考えれば管軸を含む面内における力の分布が複雑となる事は先に述べた通りであり、特に管軸の周のねじりモーメントの存在が否定出来なくなつて来る。すなわち一般特性を見る為それ等を非常に単純化して先の(1)式を作つたのである。

管の周の方向の弾性係数が零の時の(1)の式の解の第一調波はオイラーの長い柱に、その軸の方向にスラストのある場合の解と全く一致する事は当然であつて管の場合は、それより強くなるべきを示す式となつてゐる。しかし、これ等は既知の事に属するが、最も困難な問題は雌ネジの先端と雄ネジの基部の接する所の近くに起る現象である。この事は先の式の境界における条件及び管自身の厚さが重要な項目となつて来て、先の式の中に今一つ管の直径に直角な円筒面内で起る力の分布を考えなければならなくなる。しかし実際起つた現象は、主として、この境界から、可成り離れた場所に先づ屈曲が起つて居る(第 1, 2, 3 図参照)ので先の解で良いとしたのである。ただし、この時の  $x$  の値は両ネジの接するところが、 $x=0$  ではなく、それより稍々離れた所、 $x=|c|$  に、 $x=0$  を移し、かつ  $\frac{dy}{dx}=0$  は、 $x=l$  と  $x=|c|$  とで起り、かつ又両所で  $y=0$  なる条件を入れねばならないのである。もし充分な大きさの製作の不均一がネジに存在するならば何処か一ヶ所だけで雄ネジと雌ネジが接して、そこだけに押し合う力が存在し、他は離れてここ



に考えた力が零となり、先に仮定した条件が成立するようになる。一般には、この方の条件が実在可能となると考えられ、これが又先の解を取つた理由ともなるのである。又当然ではあるが、この雄ネジ雌ネジに切られた山で互に押し合う力の合成が第3図の場合には雌ネジ内の圧力となり、雄ネジ内の張力となるのである。従つて管軸方向の成分は必らず、等しくなるので、その合力である  $X, Y$  は又等しく引かれている。

次に、雌ネジの先端がネジの基部に接すると同時に胴づきも又起つている場合を考えて見る。この時の様相は第8図に示してある。ここで問題になるのは如何なる部



第8図 第6図、第7図の条件が同時に存在する時の力と位置の関係図

分の管が圧力を受け、他の部分が張力を受けるかである。管の受ける圧力も張力も等しく、かつネジ山の互に接し押しあう点がネジの切られた部分の丁度中央であるとする、この時の説明図は、第8図の様になり、 $0 < x < l/2$  の間で管は圧力を受け  $l/2 < x < l$  で張力を受けるようになる。これは全くの理想型であつて、このような事は現実には容易に起らない事は明らかである。しかして、この時には

$$X = Y = X_1 + Y_1 = 2X_1$$

である。この事情の下では又、

$$F = 2F_1$$

となる。一般には、

$$F = mF_1 \quad m > 1 \quad (7)$$

で常に、

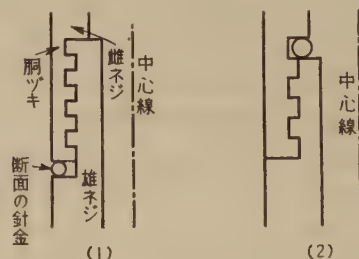
$$F > F_1$$

となる。ここで、初めの目的に対する一つの解答が得られたわけである。すなわち、今適当な方法によつて管端が雄ネジの基部に当たると同時に胴づきが起るように作れば他の部分の作りは全く同じであつても常に第(1)式中の  $F$  の値には、それより小である  $F_1$  が代入さるべき事

になると同時に、又  $l$  の値が少となるのである。従つて、ここに継手の強さを増大し得る方式のある事が明らかである。

しかし第8図に書かれた条件に似た事情は製作技術上非常に困難である事も又明らかなので何か別途にかくのごとき条件に似た事情が容易に起る様に考案する必要がある、以下に、その一案を書いてみる。

まず、胴ヅキが先に起るように両ネジを切る。しかし管の方の長さを例えば 1mm 短いようにする。すなわち胴ヅキの起つた時に雌ネジの先端と雄ネジの基部の間には、なお 1mm の間隙が存在するようにする。この 1mm の長さには、左程の精度は必要としないように考えられるが一応 1mm としておく(第9図参照)。



第9図 継手強化法式を示す

次に、ネジをしめる前に銅のような性質の断面の円型の針金を輪にして先の間隙に入れて後にしめる。針金の直径は 1mm より少々大きくしておく。この針金の性質と直径は実験的に定める事も理論的に計算で定める事も出来るように思われるが、実験によつた方が簡単であると考えられる。

ここに使用し得る金属としては鉄、銅、真鍮、アルミニウム、鉛などがある<sup>3)</sup>。しかして考えた案は、金属の輪そのものの性質と、その円形による幾何学的性質の両者を合せ考えたもので、これによれば第(7)式の  $m$  の値を 2 に近くする事も可能であると見られる。ただ実際に起る  $l_1$  なる値は如何なる値となるかが問題点であつて、この値は必らずしも  $l/2$  にはならず特に両方のねじの山が接するために要する長さ  $dl$  を考えれば平均において、

$$l_1 < l/2$$

でなければならないので継手の強度は非常に増大し得るかにみえるが、この時は山の強度が問題となつて来るので、それ程、理想的に大きくなるとは考えられない。又第9図(2)の様な場合も考えられるがこの方は実用価値

(1) この案に対して、日本大学工学部の工学博士 倉西正嗣教授は、プラスチックの輪の使用が良いかも知れないとの意見を出された。鋼と同じ位の強さを持つからである。

は少い。オイラーの柱に対する不変位釣合を定める最高のスラストを与える式が、ここに考えた境界条件に似合うものとして、

$$P=4\pi^2\frac{EI}{l^2} \quad (8)$$

(他に似た釣合を与える場合として

$$\frac{\pi^2 EI}{l^2}, \frac{\pi^2 EI}{4l^2}, \frac{2\pi^2 EI}{l^2} \text{ 等がある。})$$

で与えられるに対し第(4)式よりの解は  $P$  の代りに  $F$  を使用して、その大きさを定める式として、

$$\frac{4\pi^2}{l^2} = \frac{a^2 + Va^4 - 4b^2}{2} \quad (9)$$

が得られる。(2)式により  $a^2$  は  $F$  に比例するから先に述べたように(9)式は  $b^2$  が零の時に全く(8)式と一致するようになる。ただし、この零である事は現実には物理学的に不可能な事であつて、その原因は  $I$  の中に管である条件が入つて来るからである。又(9)式中の  $a^2$ ,  $b^2$  共に  $l$  を含んで居ないのであるが、しかしネジの山及び谷、及び時当りの山の数等は  $l$  の間の平均値を使用すべき  $E$ ,  $R$  等に響きを持つので(9)式の右辺も亦  $l$  の関数であつて、ただ大きな影響が無いだけである。同様の注意は  $a^2$  中にある  $E$  の値と  $b^2$  中にある  $E$  の値とは異なるべき事も注意さるべきであつて、ねじれが非常に低い場合にのみ両者の値は同じになる筈である。

**第4種：** 継手の部位を丈夫にするというここに考えた目的からは離れるのであるが、第4種として、数えるべき解が今一つある。これは、継手の所の安全度を増すともいうべきもので強さを増すという本来の考え方からは変つているものである。今回転偶力に反対する偶力が例えば管端の「ダイヤモンド・ダイス」に何か特に堅いものが当り少時間急増する為め起る衝撃で第1種、あるいは第3種が起きて、管が切れ落ちるのを防ぐ方式とな

るものである。ここでは雄ネジの洞づきは起らず雌ネジも第2図の  $E$  及び次で  $F$  が起り、あるいは第3図の  $H$ ,  $K$  のように、ふくらむ事なく先ず第2図の  $F$  の次に  $G$  なる割れ目が出来て雄ネジは先へねじ込まれてゆく方式である。かくて偶力が一時的に増大し以上のような部分を破壊して別に管が中断される事なくて止む場合を目標とするのである。

もし充分に雌ネジが長く切られているならば、過大偶力が管に数次にわたつて起されても第1種より第3種までの害は起らずに管を全部無事に引きあげ別の管と取りかえうる安全方式である。この為めには第1図に於ける  $\theta$  と内厚を適当に取りそこで起される摩擦と管の円周方向の伸び及び第1式の脹みを問題にする場合である。

以上数種の問題を考えて見たが実験には費用が相当にかかり、この為めに必要な時間との為め実験は後の機会に行う事として凡その解を得たものとして研究は中止されたのである。

第 1 表 長さ設計表 (第4図参照)

製作所	A	B	C	D	E	F	G	L	$\theta$	ネジ山数/吋
鉦 研	33.5	12	28	24	30	50	30	110	15°	4
クレリアス	33.5	15	28	24.5	30	60	30	120	15°	4

スウェーデン「クレリアス」社製品と比較せり

第 2 表 強度計算表 (第4図参照)

	ABB部位 引張強さ kg/mm <sup>2</sup>	C 部 倍 引張強さ kg/mm <sup>2</sup>	ABB部位 振り強さ kg/cm <sup>2</sup>	C 部 位 振り強さ kg/cm <sup>2</sup>
鉦 研 使用のもの	76.2	62	7,620	6,200
クレリアス	68.7	62	6,870	6,200

スウェーデン「クレリアス」社製品と比較せり

# 円弧ダイス及び円壻プラグによる 薄肉パイプの引抜きについて

(1956 年 8 月 17 日受理)

栗 屋 正 春\*

Drawing Thin-walled Tubing with a Cylindrical Plug through a Circular contour of Die

By Masaharu AWAYA

In the previous paper, the drawing of a thin walled tube with a tapered plug through a tapered die has been analyzed.

Here, the author analyzed the drawing of a thin walled tube with a stationary cylindrical plug through a circular contour of die. In this case, the yielding stress of the material is assumed to be constant before and after drawing.

The author derived, in the previous paper<sup>(1)</sup>, two differential equations relating to the longitudinal stress and the radial pressure, based on the fundamental theory of tube drawing. These equations have been solved for the case of variable values of  $B = (\mu_1 + \mu_2)/(\tan \alpha - \tan \beta)$ .

In this paper, the fundamental differential equations were solved for the case of variable die curvature.

So far, the theory has been developed only for tubing having a very thin wall. Extension of the theory to heavy walled tubings is contemplated, and other problems are the drawing of tubing through dies of the hyperbolic and parabolic contour.

## 序

前論文で筆者はテーパードイス及びテーパープラグによる引抜きについて解析を行つた。しかし実際に工場で使用しているダイスは殆ど曲面ダイスである。従つてこの論文では円弧ダイス及び円壻プラグについて解析を行つてみた。前と同じく、引抜き工程を空引きと肉厚減少工程に分けて、その各工程に対する平衡方程式をたて、ダイスの曲率半径、ダイス及びプラグと材料間の摩擦係数の和を色々と変えて計算を行つた。この場合、計算を簡単にするために、前と同じく引抜き減少による加工硬化を無視して、引抜き前後における材料の引張降伏応力は一定であると仮定した。

この理論は薄肉パイプに対して行つたが、肉がある程度厚くなつても、そのまま拡張できる。しかし肉が厚くなつてくると、材料のせん維方向の変化による応力を無視できなくなるので、この場合は中実棒の引抜きと同じく、せん維方向変化による応力を附加しなければならないと思う。

この論文で取扱つたのは、円弧ダイスの場合であるが、厳密に言うと拋物線ダイスとして取扱つているわけである。双曲線ダイスについても同様に取扱える、これについては次の機会に発表する。

## 1. 記号の説明

つぎの記号を用いる。

$\sigma_x$  : ダイス出口より  $x$  なる点に於ける縦方向引張応力。

$\alpha$  : ダイス出口より  $x$  なる点に於けるダイス面の法線と鉛直線とのなす角。

$2R_1$  : 引抜き前のパイプの外径。

$2R_2$  : 引抜き後のパイプの外径。

$2R$  : ダイス出口より  $x$  なる点におけるパイプの外径。

$h_1$  : 引抜き前のパイプの肉厚。

$h_2$  : 引抜き後のパイプの肉厚。

$h$  : ダイス出口より  $x$  なる点におけるパイプの肉厚。

$\mu_1$  : ダイスと材料間の摩擦係数。

$\mu_2$  : 心金と材料間の摩擦係数。

$\mu$  :  $\mu = \mu_1 + \mu_2$ 。

$\rho$  : 円弧ダイスの曲率半径。

$p$  : ダイス面及び心金からの垂直圧力。

$\sigma_0$  : パイプの引張降伏応力。引抜き前後の平均値をとる。

$\sigma_0'$  :  $\sigma_0' = \frac{2}{\sqrt{3}} \sigma_0$ 。

\* 機械工学科



$$\gamma_1 : R_2 = \gamma_1^2 \rho / 2.$$

$$v : v = \tan^{-1} z = \tan^{-1} x / \gamma_1 \rho \\ = \tan^{-1} \sqrt{\frac{R - R_2}{R_2}} = \sqrt{\frac{R - R_2}{R_2}}.$$

$$\gamma_2 : h_2 = \gamma_2^2 \rho / 2.$$

$$w : w = \tan^{-1} x / \gamma_2 \rho = \tan^{-1} \sqrt{\frac{h - h_2}{h_2}} = \sqrt{\frac{h - h_2}{h_2}}.$$

$$b : \mu_2 = b \times \mu.$$

$\sigma_{x1}$ : 肉厚減少開始点に於ける空引きにより生じた縦方向引張応力.

$\sigma_{xe}$ : ダイス出口における縦方向引張応力.

$\sigma_{x0}$ :  $S_1 \sigma_{x0}$  が逆張力である.

$F_1$ : 出口断面において材料に働く引張応力の合力.

$F_2$ : 心金によつて生ずる引拔力.

$F$ : 全引拔力.  $F = F_1 + F_2$  である.

$$S_1 : S_1 = 2\pi R_1 h_1$$

$$S_2 : S_2 = 2\pi R_2 h_2$$

## 2. 計算式の誘導

前論文と同じように、ダイスとプラグによつてパイプを引抜く工程を空引きの部分と心金引きの部分に分けて解析を行う.

### (a) 空引きの部分.

円弧ダイスによつて、パイプの外径を減少する場合は、前と同じくパイプの肉厚は微量であるが増加する. この増加量は無視して、外径の絞りによつて肉厚は増加しないものとする.

従つて引抜方向の平衡方程式は前と同様に

$$\frac{d\sigma_x}{dR} + \frac{1}{R} \sigma_x + p(1 + \mu \cot \alpha) \frac{1}{h_1} = 0. \quad (1)$$

薄肉パイプであるから、円周方向の圧縮応力  $\sigma_\theta$  は肉厚方向の圧縮応力  $\sigma_z$  に比べてはるかに大きい. 従つて  $\sigma_z$ ,  $\sigma_\theta$ ,  $\sigma_x$  間に次の関係が成立する.

$$\sigma_x > 0 > \sigma_z > \sigma_\theta.$$

故に平面歪として考えた Mises-Hencky の塑性変形条件式は次のようになる.

$$\sigma_x - \sigma_\theta = \frac{2}{\sqrt{3}} \sigma_0 = \sigma_0'. \quad (2)$$

$$\sigma_\theta = -\frac{R}{h_1} p(1 - \mu_1 \tan \alpha) \text{ と考えてよいから, (2) 式は}$$

次のようになる.

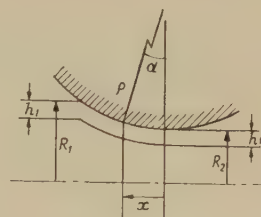
$$\sigma_x + \frac{R}{h_1} p(1 - \mu_1 \tan \alpha) = \sigma_0'. \quad (3)$$

ここで  $\mu_1 \tan \alpha$  の項は小さいので省略すると, (3) 式

$$\text{は} \quad \sigma_x + \frac{R}{h_1} p = \sigma_0' \quad (4)$$

(1), (4) 式から  $p$  を消去すると,

$$\frac{d\sigma_x}{dR} - \frac{1}{R} \mu_1 \cot \alpha \sigma_x = -\frac{\sigma_0'}{R} (1 + \mu_1 \cot \alpha). \quad (5)$$



第1図 ダイスによるパイプの空引状態を示す.

$\alpha$  は小さいから, 第1図から分る如く,

$$\tan \alpha \doteq \sin \alpha = \frac{x}{\rho}, \quad (6)$$

$$R - R_2 = \rho(1 - \cos \alpha) \doteq \frac{x^2}{2\rho} \quad (7)$$

$$dR = \frac{x}{\rho} dx \quad (8)$$

(6) (7) (8) 式を (5) 式に代入して整理すると,

$$(x^2 + 2\rho R_2) \frac{d\rho_x}{dx} - 2\mu_1 \rho \sigma_x = -2\sigma_0'(x + \mu_1 \rho). \quad (9)$$

$x = \gamma_1 \rho z$ ,  $R_2 = \gamma_1^2 \rho / 2$  と置き, これを (9) 式に代入すると, (9) 式は次の通りになる.

$$(1 + z^2) \frac{d\rho_x}{dz} - 2 \frac{\mu_1}{\gamma_1} \sigma_x = -2\sigma_0' \left( z + \frac{\mu_1}{\gamma_1} \right). \quad (10)$$

$z = \tan v$  と置くと,  $dz = (1 + z^2) dv$  である. 更に  $2\mu_1/\gamma_1 = A_1$  と置くと, (10) 式は

$$\frac{d\sigma_x}{dv} - A_1 \sigma_x = -\sigma_0'(A_1 + 2 \tan v). \quad (11)$$

(11) 式の解は次の通りである.

$$\sigma_x = e^{A_1 v} \left\{ C_1 - \sigma_0' \int (A_1 + 2 \tan v) e^{-A_1 v} dv \right\} \\ = C_1 e^{A_1 v} + \sigma_0' e^{A_1 v} \int \tan v e^{-A_1 v} dv. \quad (12)$$

$\tan v$  を  $v$  の巾級数に展開すると,

$$\tan v = v + \frac{v^3}{3} + \frac{5}{12} v^5 + \dots$$

普通の場合,  $v$  は小さい値であるから, 第1項だけとれば充分である. 従つて (12) 式は次のようになる.

$$\sigma_x = C_1 e^{A_1 v} + \sigma_0' \left( 1 + \frac{2(1 + A_1 v)}{A_1^2} \right) e^{-A_1 v} \quad (13)$$

積分常数  $C_1$  は次のようにしてきめる. 境界条件として,  $h = h_1$  のとき, 即ち  $v = v_1$  のとき,  $\sigma_x = 0$  であるから,

$$C_1 = -\sigma_0' \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1 v_1}$$

故に (13) 式から

$$\sigma_x = \sigma_0' \left\{ \left( 1 + \frac{2v}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) - \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1(v_1-v)} \right\} \quad (14)$$

逆張力が作用しているときは、逆張力を  $S_1\sigma_{x0}$  とすると (ここで  $S_1=2\pi R_1 h_1$  である),

$v=v_1$  のとき,  $\sigma_x=\sigma_{x0}$  であるから,

$$C_1 = \left[ \sigma_{x0} - \sigma_0' \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) \right] e^{-A_1 v_1}$$

故に

$$\sigma_x = \sigma_0' \left\{ \left( 1 + \frac{2v}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) - \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1(v_1-v)} \right\} + \sigma_{x0} e^{-A_1(v_1-v)} \quad (15)$$

従つて垂直圧力  $p$  は (4) 式から,

逆張力のない場合, (14) 式を用いて,

$$p = \frac{h_1}{R} \left\{ \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1(v_1-v)} - \left( \frac{2v}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) \right\} \quad (16)$$

逆張力が作用しているとき, (15) 式から

$$p = \frac{h_1}{R} \left\{ \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1(v_1-v)} - \left( \frac{2v}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) \right\} - \frac{h_1}{R} \sigma_{x0} e^{-A_1(v_1-v)} \quad (17)$$

更にダイス出口における引抜応力  $\sigma_{xe}$  は、逆張力のないとき, (14) 式から

$$\sigma_{xe} = \sigma_0' \left\{ \left( 1 + \frac{2}{A_1^2} \right) - \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1 v_1} \right\} \quad (18)$$

逆張力のある場合, (15) 式から

$$\sigma_{xe} = \sigma_0' \left\{ \left( 1 + \frac{2}{A_1^2} \right) - \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1 v_1} \right\} + \sigma_{x0} e^{-A_1 v_1} \quad (19)$$

ダイスのみによつて外径を絞る場合の引抜力,  $F$  は  $2\pi R_2 h_2 \sigma_{xe}$  であるから,

$$F = 2\pi R_2 h_2 \sigma_{xe}$$

逆張力のないとき, (18) 式から

$$F = 2\pi R_2 h_2 \sigma_0' \left\{ \left( 1 + \frac{2}{A_1^2} \right) - \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1 v_1} \right\} \quad (20)$$

逆張力が作用しているとき, (19) 式を用いて

$$F = 2\pi R_2 h_2 \sigma_0' \left\{ \left( 1 + \frac{2}{A_1^2} \right) - \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1 v_1} \right\} + 2\pi R_2 h_2 \sigma_{x0} e^{-A_1 v_1} \quad (21)$$

$A_1=0$  のとき, 即ち  $\mu_1=0$  のときは, 以上の式を用いることが出来ない。

この場合は (5) 式より

$$\frac{d\sigma_x}{dR} = -\frac{\sigma_0'}{R} \quad (22)$$

故に

$$\sigma_x = C_1 - \sigma_0' \log_e R \quad (23)$$

$C_1$  を決定する境界条件として,  $R=R_1$  のとき,  $\sigma_x=0$  であるから,

$$C_1 = \sigma_0' \log_e R_1$$

従つて (23) 式より

$$\sigma_x = \sigma_0' \log_e \left( \frac{R_1}{R} \right) \quad (24)$$

垂直圧力  $p$  は (4) 式より

$$p = \frac{h_1}{R} \left[ 1 - \log_e \left( \frac{R_1}{R} \right) \right] \sigma_0' \quad (25)$$

逆張力が作用しているときは,  $R=R_1$  のとき,

$\sigma_x=\sigma_{x0}$  であるから,

$$C_1 = \sigma_{x0} + \sigma_0' \log_e R_1$$

故に

$$\sigma_x = \sigma_{x0} + \sigma_0' \log_e \left( \frac{R_1}{R} \right) \quad (26)$$

又

$$p = \frac{h_1}{R} \sigma_0' \left[ 1 - \log_e \left( \frac{R_1}{R} \right) \right] - \frac{h_1}{R} \sigma_{x0} \quad (27)$$

ダイス出口における引抜応力  $\sigma_{xe}$  は, (24) 式より次のようになる。

$$\sigma_{xe} = \sigma_0' \log_e (R_1/R_2) \quad (28)$$

逆張力が作用しているときは, (26) 式より

$$\sigma_{xe} = \sigma_{x0} + \sigma_0' \log_e (R_1/R_2).$$

従つて引抜力  $F$  は、逆張力のない場合,

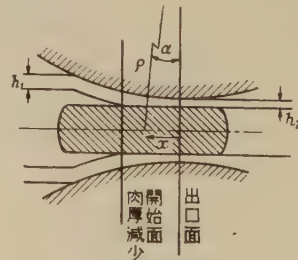
$$F = 2\pi R_2 h_2 \sigma_0' \log_e (R_1/R_2) \quad (29)$$

逆張力が作用しているとき,

$$F = 2\pi R_2 h_2 \sigma_{x0} + 2\pi R_2 h_2 \sigma_0' \log_e (R_1/R_2). \quad (30)$$

(b) 心金引きの部分。

前論文では、外径の減少も考慮に入れて計算したが、この場合は、肉厚減少量しかパイプの外径は減少しない。



第2図 ダイス及びプラグによるパイプ引抜状態を示す。

ので、パイプ外径の減少は考慮に入れなくとも充分である。

従つて第3図から分るように、次の平衡方程式が成り立つ。

$$d(h\sigma_x) + p(\mu_1 + \mu_2 + \tan \alpha) dx = 0 \quad (31)$$

心金引きの場合は塑性変形条件式は前論文と同じく,  
 $\sigma_x + p = \sigma_0'$  であるから  $p = \sigma_0' - \sigma_x$  を (26) 式に代入し  
 て  $p$  を消去すると, (26) 式は次のようになる.

$$gd\sigma + \sigma_x dh + (\sigma_0' - \sigma_x)(\mu_1 + \mu_2 + \tan \alpha) dx = 0 \quad (32)$$

第 2 図から

$$h = h_2 + \rho(1 - \cos \alpha) = h_2 + \frac{x^2}{2\rho} \quad (33)$$

(27) (28) 式より,

$$\left(h_2 + \frac{x^2}{2\rho}\right) \frac{d\sigma_x}{dx} - (\mu_1 + \mu_2)\sigma_x = -\sigma_0' \left(\mu_1 + \mu_2 + \frac{x}{\rho}\right) \quad (34)$$

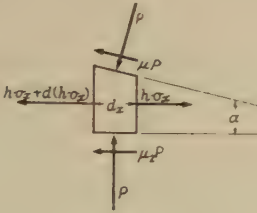


Fig. 3.

$x = \gamma_2 \rho z$ ,  $h_2 = \rho \gamma_2^2 / 2$ ,  $\mu_1 + \mu_2 = \mu$  とすると, (29) 式は次のようになる.

$$(1 + z^2) \frac{d\sigma_x}{dz} - \frac{2\mu}{\gamma_2} \sigma_x = -\sigma_0' \left( \frac{2\mu}{\gamma_2} + 2z \right) \quad (35)$$

$2\mu/\gamma_2 = A_2$  とし, 更に  $z = \tan w$  とすると,

$dz = (1 + z^2)dw$  であるから, (30) 式は

$$\frac{d\sigma_x}{dw} - A_2 \sigma_x = -\sigma_0' (A_2 + 2 \tan w) \quad (36)$$

(31) 式の解は

$$\begin{aligned} \sigma_x &= e^{A_2 w} \left\{ C_2 - \sigma_0' \int (A_2 + 2 \tan w) e^{-A_2 w} dw \right\} \quad (37) \\ &= C_1 e^{A_2 w} + \sigma_0' - 2\sigma_0' e^{A_2 w} \int \tan w e^{-A_2 w} dw \end{aligned}$$

$\tan w$  を  $w$  の巾級数に展開すると,

$$\tan w = w + \frac{w^3}{3} + \frac{5}{12} w^5 + \dots$$

普通の場合  $w$  は小さいから, 第 1 項だけとると, (32) 式は次のようになる.

$$\sigma_x = C_2 e^{A_2 w} + \sigma_0' \left[ 1 + \frac{2(1 + A_2 w)}{A_2^2} \right] \quad (38)$$

積分常数  $C_2$  は次のようにしてきめる. 境界条件として,  $h = h_1$  のとき, 即ち  $w = w_1$  のとき,  $\sigma_x = \sigma_{x1}$  であるから,

$$C_2 = \left[ \sigma_{x1} - \sigma_0' \left( 1 + \frac{2}{A_2^2} + \frac{2w_1}{A_2} \right) \right] e^{-A_2 w_1}$$

故に

$$\begin{aligned} \sigma_x &= \sigma_0' \left[ 1 + \frac{2w}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} - \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2(w_1 - w)} \right] \\ &\quad + \sigma_{x1} e^{-A_2(w_1 - w)} \end{aligned} \quad (39)$$

ここで, 逆張力のないときは,

$$\sigma_{x1} = \sigma_0' \left\{ 1 + \frac{2v_e}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} - \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1(v_1 - v_e)} \right\} \quad (40)$$

逆張力のあるときは,

$$\begin{aligned} \sigma_{x1} &= \sigma_0' \left\{ 1 + \frac{2v_e}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} - \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1(v_1 - v_e)} \right\} \\ &\quad + \sigma_{x0} e^{-A_1(v_1 - v_e)} \end{aligned} \quad (41)$$

従つて垂直圧力  $p$  は

$$\begin{aligned} p &= \sigma_0' \left[ \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2(w_1 - w)} - \left( \frac{2w}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) \right] \\ &\quad - \sigma_{x1} e^{-A_2(w_1 - w)} \end{aligned} \quad (42)$$

ダイス出口に於ける応力  $\sigma_{xe}$  は,  $w = 0$  であるから, (34) 式から,

$$\sigma_{xe} = \sigma_{x1} e^{-A_2 w_1} + \sigma_0' \left[ 1 + \frac{2}{A_2^2} - \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2 w_1} \right] \quad (43)$$

(c) 引拔力.

出口面における材料の引張応力による引拔力  $F_1$  は (38) 式から,

$$\begin{aligned} F_1 &= 2\pi R_2 h_2 \sigma_{xe} \\ &\quad - 2\pi R_2 h_2 \left\{ \sigma_{x1} e^{-A_2 w_1} + \sigma_0' \left[ 1 + \frac{2}{A_2^2} - \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2 w_1} \right] \right\} \end{aligned} \quad (44)$$

プラグによる引拔力  $F_2$  は

$$\begin{aligned} F_2 &= 2\pi R_2 \mu_2 \int_0^{x_e} p dx \\ &= 2\pi R_2 \mu_2 \gamma_2 \rho \int_0^{z_e} p dz \\ &= 2\pi R_2 \mu_2 \gamma_2 \rho \int_0^{w_1} p dw \end{aligned} \quad (45)$$

上に (37) 式を代入して積分をすると,

$$\begin{aligned} F_2 &= 2\pi R_2 h_2 \frac{\mu_2}{\mu} \left\{ \sigma_0' \left( 1 + \frac{2}{A_2^2} - w_1^2 \right) \right. \\ &\quad \left. - \sigma_0' \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2 w_1} - \sigma_{x1} (1 - e^{-A_2 w_1}) \right\} \end{aligned} \quad (46)$$

$\mu_2 = b\mu$  とすると,

$$\begin{aligned} F_2 &= 2\pi R_2 h_2 b \left\{ \sigma_0' \left( 1 + \frac{2}{A_2^2} - w_1^2 \right) \right. \\ &\quad \left. - \sigma_0' \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2 w_1} - \sigma_{x1} (1 - e^{-A_2 w_1}) \right\} \end{aligned} \quad (47)$$

従つて全引拔力  $F$  は (39), (42) 式より



$$\begin{aligned} \frac{F}{2\pi R_2 h_2} &= \frac{1}{2\pi R_2 h_2} (F_1 + F_2) \\ &= \sigma_{x1} [(1+b)e^{-A_2 w_1} - b] \\ &\quad + \sigma_0' \left[ (1+b) \left( 1 + \frac{2}{A_2^2} \right) - b w_1^2 \right. \\ &\quad \left. - (1+b) \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2 w_1} \right] \quad (48) \end{aligned}$$

ここで  $b = \frac{1}{2}$ , 即ち  $\mu_1 = \mu_2 = \frac{1}{2}\mu$  とすると, (43) 式は次のようになる.

$$\begin{aligned} \frac{F}{2\pi R_2 h_2} &= \frac{\sigma_{x1}}{2} (3e^{-A_2 w_1} - 1) + \frac{3}{2} \sigma_0' \left[ 1 + \frac{2}{A_2^2} - \frac{w_1^2}{3} \right. \\ &\quad \left. - \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2 w_1} \right] \quad (49) \end{aligned}$$

$A = 0$ , 即ち  $\mu_1 + \mu_2 = \mu = 0$  のときは, 以上の式から求めることが出来ない. この場合は (29) 式から

$$\left( h_2 + \frac{x^2}{2\rho} \right) \frac{d\sigma_x}{dx} = -\sigma_0' \frac{x}{\rho} \quad (50)$$

故に  $\sigma_x = C_3 - \sigma_0' \log(x^2 + 2\rho h_2)$ .

$x = x_e$  のとき, 即ち  $h = h_1$  のとき,  $\sigma_x = \sigma_{x1}$  であるから,

$$\sigma_x = \sigma_{x1} + \sigma_0' \log_e \frac{x_e^2 + 2\rho h_2}{x^2 + 2\rho h_2}$$

$2\rho h = x^2 + 2\rho h_2$ ,  $2\rho h_1 = x_e^2 + 2\rho h_2$  であるから

$$\sigma_x = \sigma_{x1} + \sigma_0' \log_e \left( \frac{h_1}{h} \right) \quad (51)$$

従つて

$$p = \sigma_0' \left[ 1 - \log_e \left( \frac{h_1}{h} \right) \right] - \sigma_{x1} \quad (52)$$

ここで

$$\sigma_{x1} = \sigma_0' \log_e \left( \frac{R_1}{R_e} \right) \quad (53)$$

出口に於ける応力は

$$\sigma_{xe} = \sigma_{x1} + \sigma_0' \log_e \left( \frac{h_1}{h_2} \right) \quad (54)$$

従つて, ダイスによる引拉力  $F_1$  は,

$$\begin{aligned} F_1 &= 2\pi R_2 h_2 \sigma_{xe} \\ &= 2\pi R_2 h_2 \left[ \sigma_{x1} + \sigma_0' \log_e \left( \frac{h_1}{h_2} \right) \right] \quad (55) \end{aligned}$$

又, 心金による引拉力  $F_2$  は,  $\mu_2 = 0$  であるから

$$F_2 = 0$$

故に全引拉力  $F$  は,

$$F = 2\pi R_2 h_2 \left[ \sigma_{x1} + \sigma_0' \log_e \left( \frac{h_1}{h_2} \right) \right] \quad (56)$$

### 3. 数値計算

引抜前のパイプの寸法.

$$2R_1 = 32 \text{ mm}, h_1 = 1 \text{ mm}$$

引抜後の寸法.

$$2R_2 = 30 \text{ mm}, h_2 = 1.0, 0.9, 0.8, 0.7, 0.6 \text{ mm}.$$

$h_2/h_1 = \lambda_1$ ,  $h/h_1 = \lambda$  とすると,

$$A_2 = \frac{2\mu}{\gamma_2} = \mu \sqrt{\frac{2\rho}{\lambda_1}}, w_1 = \sqrt{\frac{1-\lambda_1}{\lambda_1}}, w = \sqrt{\frac{\lambda-\lambda_1}{\lambda_1}}$$

以上の数値を (34), (35), (39), (42), (43), (44) の各式に代入すると,

$$\frac{\sigma_{x1}}{\sigma_0'} = 1 + \frac{2v_e}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} - \left( 1 + \frac{2v_1}{A_1} + \frac{2}{A_1^2} \right) e^{-A_1(v_1 - v_e)} \quad (57)$$

$$\begin{aligned} \frac{\sigma_x}{\sigma_0'} &= 1 + \frac{2w}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} - \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2(w_1 - w)} \\ &\quad + \frac{\sigma_{x1}}{\sigma_0'} e^{-A_2(w - w_1)} \quad (58) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{F_1}{2\pi R_2 h_2 \sigma_0'} &= 1 + \frac{2}{A_2^2} - \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2 w_1} \\ &\quad + \frac{\sigma_{x1}}{\sigma_0'} e^{-A_2 w_1} \quad (59) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{F_2}{2\pi R_2 h_2 \sigma_0'} &= b \left[ 1 + \frac{2}{A_2^2} - w_1^2 - \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2 w_1} \right. \\ &\quad \left. - \frac{\sigma_{x1}}{\sigma_0'} (1 - e^{-A_2 w_1}) \right] \quad (60) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{F}{2\pi R_2 h_2 \sigma_0'} &= (1+b) \left( 1 + \frac{2}{A_2^2} \right) - b w_1^2 \\ &\quad - (1+b) \left( 1 + \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2 w_1} \\ &\quad + \frac{\sigma_{x1}}{\sigma_0'} [(1+b) - A_2 w_1 - b] \quad (61) \end{aligned}$$

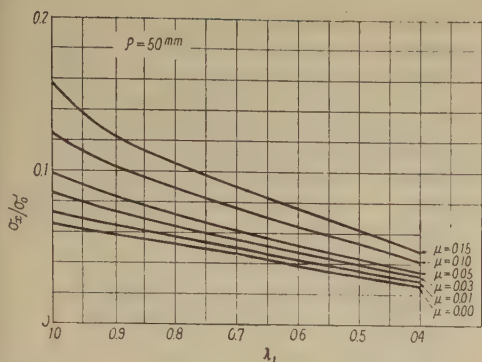
$b = 1/2$ , 即ち  $\mu_1 = \mu_2$  のとき,

$$\begin{aligned} \frac{F}{2\pi R_2 h_2 \sigma_0'} &= \frac{3}{2} \left[ 1 + \frac{2}{A_2^2} - \frac{w_1^2}{3} - \left( 1 - \frac{2w_1}{A_2} + \frac{2}{A_2^2} \right) e^{-A_2 w_1} \right] \\ &\quad + \frac{1}{2} \frac{\sigma_{x1}}{\sigma_0'} (3e^{-A_2 w_1} - 1) \quad (62) \end{aligned}$$

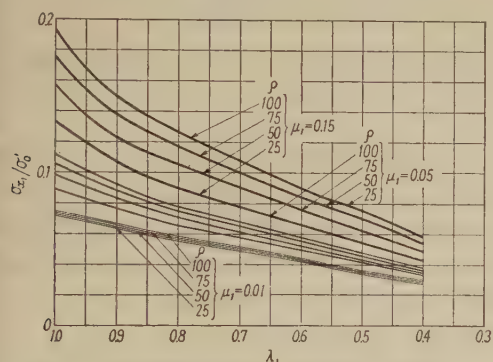
第4図は  $\sigma_{x1} \sim \lambda_1$  曲線である.  $\sigma_{x1}$  はダイスと材料間の摩擦係数  $\mu_1$  が大きくなる程, 大きくなり, また減少率が大きくなる程, 即ち  $\lambda_1$  が小さくなる程, 小さくなるつてくる.

第5図は  $\sigma_{x1} \sim \lambda_1$  曲線の  $\rho$  による影響を示す. 図から分るように,  $\rho$  が大きくなると  $\sigma_{x1}$  は大きくなるが,  $\mu_1$  が小さいときはその程度は小さく,  $\mu_1$  が大きくなると,  $\rho$  による影響も大きくなつてくる.

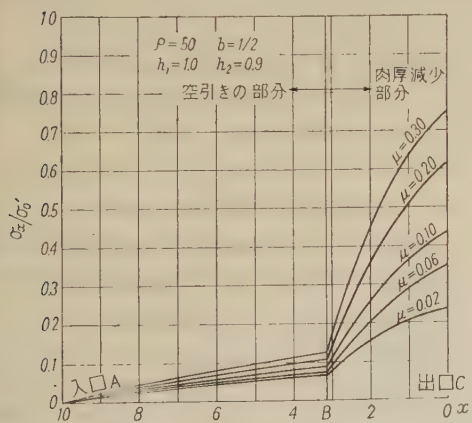
第6図はダイス入口から出口までの応力分布を示したものである.  $A$  から  $B$  までは空引きの部分であり, 心金は作用していない.  $B$  に到つて, はじめて心金が働き, 肉厚減少を始める.  $B$  点から急激に  $\sigma_x$  は上昇していることに注意すべきであると思う.  $\sigma_x/\sigma_0' = 0.866$  の水平線が引抜限界線である, 引抜作業中に心金が無くと



第4図  $\sigma_{z1} \sim \lambda_1$  曲線。ダイスと材料間の摩擦係数  $\mu_1$  による変化を示す。



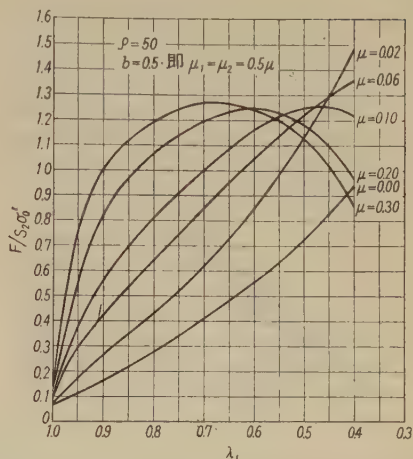
第5図  $\sigma_{z1} \sim \lambda_1$  曲線。ダイスと材料間の摩擦係数  $\mu_1$  及び  $\rho$  による変化を示す。



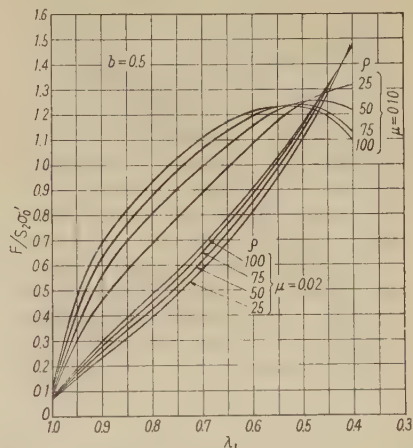
第6図 ダイス内の引抜き材料の応力分布を示す。

同時にパイプが破損することが多いが、これはB点から  $\sigma_z$  が急激に大きくなって引抜き限界線を超えるからであると思う。

第7図は引抜き力  $\sim \lambda_1$  曲線である。引抜き力はダイス及びプラグと材料間の摩擦係数  $\mu_1, \mu_2$  の和、即ち  $\mu_1 + \mu_2$



第7図 引抜き力  $\sim \lambda_1$  曲線。  $\mu_1 + \mu_2 = \mu$  による変化を示す。

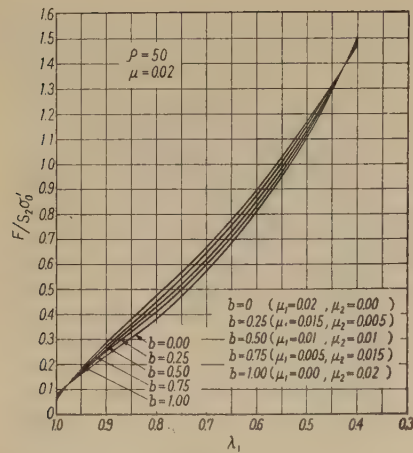


第8図 引抜き力  $\sim \lambda_1$  曲線。  $\mu$  及び  $\rho$  による変化の程度を示す。

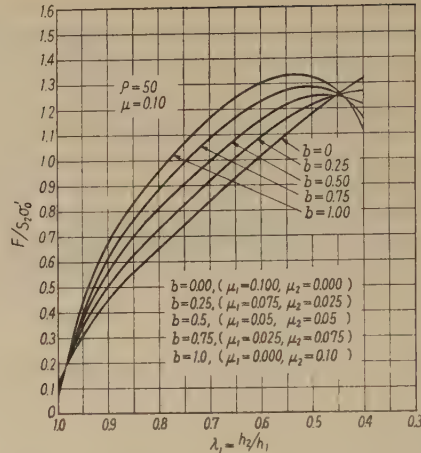
$= \mu$  の大きさによつて大きく影響される。 $\mu$  が大きくなつてくると、引抜き力  $F$  は非常に大きくなつてくる。直線ダイスの場合と同じく、 $\mu$  が或る値より大きくなると(例えば第7図では  $\mu=0.04 \sim 0.05$ )、 $F \sim \lambda_1$  曲線は  $\mu$  が小さい場合と反対の曲率を持つことになる。

第8図は引抜き力  $\sim \lambda_1$  曲線の  $\rho$  の大きさによる影響を示す。 $\rho$  が大きい程引抜き力は大きくなるが、その程度は  $\mu$  が大きい程著しい。 $\lambda_1$  が小さくなつてくると(例えば図では  $\lambda_1=0.5 \sim 0.4$ )、 $\rho$  が大きい程引抜き力は小さくなるが、この論文で行つている近似計算法では、 $\lambda_1$  が小さくなると誤差の程度が大きいためあまり意味がないと思う。

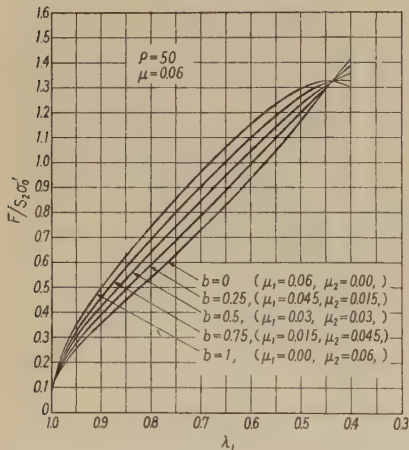
第9, 10, 11 図は引抜き力  $\sim \lambda_1$  曲線の  $b$  による変化、即ち  $\mu_1, \mu_2$  の大きさによる影響を示している。



第9図 引抜力 $\sim \lambda_1$ 曲線、 $b$ による変化を示す。



第11図 引抜力 $\sim \lambda_1$ 曲線、 $b$ の大きさによる変化を示す。



第10図 引抜力 $\sim \lambda_1$ 曲線、 $b$ の大きさによる変化を示す。

から、この解析は実際の引抜作業に応用できるものと思う。しかし引張降伏応力を一定であると仮定しているので、鉄の如く加工硬化の著しい場合には、加工硬化を考慮に入れて計算を行わなければならないが、真鍮、銅管の引抜きはこの解析で大体一致するものと思う。以上の解析から次のような結論を得た。

(a) 材料内の引張応力  $\sigma_x$  は肉厚減少開始点  $B$  より急激に大きくなる。引抜作業中に心金が働くと同時にパイプが破損することがあるが、これは  $\sigma_x$  が急激に大きくなって引抜限界線を超えるからである。

(b) 引抜力はダイス及び心金と材料間の摩擦係数の和、即ち  $\mu_1 + \mu_2 = \mu$  の大きさによつて非常に影響される。 $\mu$  が大きい程引抜力は大きくなる。

(c) 引抜力は  $\rho$  が大きい程、大きくなる。 $\mu$  が大きくなる程、その程度が大きくなってくる。

(d)  $\mu_1 + \mu_2 = \mu$  を一定とした場合、 $\lambda_1$  が大きい時、また小さい時はその影響は現われないが、実際に使用する減少率の範囲では、 $\mu_2$  が小さい程引抜力は小さく、 $\mu_2$  が大きい程引抜力が大きくなってくる。従つて心金はできるだけ滑らかに仕上げた方が引抜力は小さくてすむ。

以上の傾向は実際とよく一致していると思う。銅管の場合は、減少率によつて大きな加工硬化が現われてくるので、この点を考慮に入れなければ実際と全然一致しないと思う。この点について将来研究してみたい。

最後に種々御指導を賜つた木村教授及び倉西教授に感謝の意を表する次第である。また計算を手伝つて戴いた学生諸君に御礼を申し上げる。

4. 結 論

円弧ダイス及び円溝プラグで薄肉パイプを引抜く場合は、肉厚減少行程中の外径の減少は小さいので、これを無視できるものとして解析を行つた。又  $v, w$  は小さいものとしているから、 $(R_1 - R_2)/R_2, (h_1 - h_2)/h_2$  が小さい場合のみ、この解析を応用できる。実際の引抜作業では  $(R_1 - R_2)/R_2, (h_1 - h_2)/h_2$  は何れも小さい値である



## 参 考 文 献

- 1) 筆者: 日本大学工学研究所集報 No. 13, p. 30, 1956.
- 2) Sachs, G., J. D. Lubahn and D. P. Tracy: Drawing Thin-walled Tubing with a Moving Mandrel through a Single Stationary Die. J. Applied Mechanics Vol. 11, p. 199~210, 1944.
- 3) Sachs, G. and L. J. Klingler: The Flow of Metals through Tools of Circular Contour. J. Applied Mechanics, Vol. 14, p. 88~98, 1947.
- 4) Siebel, E.: Zur Theorie des Walzvorganges bei ungleich angetriebenen Walzen. Arch. Eisen-huettenwesen, Vol. 15, p. 125~128, 1941~42.
- 5) Lueg, W. and A. Pomp: Der Einfluss des Gegenzuges beim Ziehen von Stahldraht. Stahl u. Eisen, Vol. 63, No. 12, p. 229~236, 1943.

# 金属塩水溶液の流電作用による金属表面の変遷に関する研究 (第10報)

銅鍍金に関する浴電圧管理の重要性について

(1955年10月5日受理)

安房 信輝\*・山本 洋一\*\*

## A Study on the Changes of Metal Surface Caused by Electrolysis in Metallic Salt Solutions (Report 10)

On Importance of Control of Both Voltage for Copper Plating

By Nobuteru AWA and Yoichi YAMAMOTO

This report is on an inquiry into a theory of the control of bath voltage necessary, as an operating condition, for the copper plating either in acid or in alkaline solutions.

1. The control of bath voltage is an essential factor in copper plating performed either in acid or in alkaline solutions
2. The plating degree is at full rate of 100% in the vicinity of the decomposition voltage, becomes less than 100% below the decomposition voltage and becomes higher than 100% above the decomposition voltage.
  - i) The above mentioned conditions will change with the appearance of passive films on the anode.
  - ii) The states will also show some variation as functions of time.
3. The current efficiency of the anode tends to indicate its highest value below the decomposition voltage.
4. The current efficiency of the cathode is low in proportion and remains stationary.
5. There are much differences worthy of mentioning between the plating in an acid solution and that an alkaline solution as regards the change of the plating degree with bath voltages and those of the plating degree and the current efficiency with liquid temperatures.

The above experimental results alone are substantiate the conclusion that much importance should be attached to the control of bath voltage for the operation of copper plating.

The reports from No.1 to No.9 as a series can be regarded as maintaining a sound foundation of that conclusion.

## 1. 緒 言

一連の本研究では流電的性質に最も興味があるにもかかわらず今迄に系統的に余り研究されていなかった銅塩水溶液中における銅陽極のイオン化現象、受働態化現象などについて取扱っている。

著者は1報~5報<sup>1)</sup>においていろいろな因子に影響を受ける銅陽極のイオン化現象を、また6報<sup>2)</sup>において受働態化した後の銅陽極の溶解性を、つづいて7報、8報において陽極を溶け難くする Passive film の生成機構を、更に9報<sup>3)</sup>において  $\text{CuSO}_4$  水溶液と  $\text{CuCN}$  系鍍金液の流電的性質、特に銅の陽極の挙動並びに Passive film の生成過程などを比較検討し、併せて著者の見解

を述べた。

以上の研究結果を総括して著者は流電的性質を浴電圧によつて統一することの可能であることを見出し、陽極と陰極の相互の統一性について考察し、その理論を確立した。

銅陽極に関する流電的性質、即ち銅陽極のイオン化現象並びに受働態化現象の本質は以上の研究において既に明らかである。

本報は研究における次の段階として  $\text{CuSO}_4$  水溶液並びに  $\text{CuCN}$  系鍍金液中における陽極と陰極の相互の定量的関係を系統的にしらべ、その結果において電気鍍金の浴電圧管理が酸性液とアルカリ性液の両者に重要であ

\* 日本大学工学部工業化学科

\*\* 日本大学工学部教授

るか否かを再検討し、併せて電気鍍金に関する基礎理論の確立のための資料を得ることを企図して遂行した。

なを著者は“流電作用による金属表面の諸現象に関する研究”において別の見地から銅陽極の基本的実体をしらべ、亜鉛<sup>6)</sup>、クローム<sup>6)</sup>、金<sup>7)</sup>、白金<sup>8)</sup>についても同じ研究を行い、カドミウム<sup>9)</sup>、ニッケル<sup>10)</sup>などについても報告している。

## 2. 実験方法

three nine (Cu 99.98%)の電気銅板を emery paper で #80, #120, #240 の順によく磨き dil-HNO<sub>3</sub> に浸して Cu<sub>2</sub>O 皮膜を除去し、水洗後ベンゼン、アルコール、エーテルの順に洗滌清浄し再び水洗したものを電極として用いた。

### CuSO<sub>4</sub> 水溶液中で実験する場合

10%, 20% または 30% の CuSO<sub>4</sub> · 5H<sub>2</sub>O 水溶液を供試液として 100 cc ビーカーに高さ 50 mm まで満し、幅員が 5 mm または 10 mm の銅板(厚さ 0.35 mm)の二枚を 30 mm の距離に固定し、浸漬深度を 10 mm から 50 mm の間に変えて実験した。液温は 20±0.5°C とし、電源には蓄電池(6V, 48 AH)一基を用いた。

まず摺動抵抗器を 30 sec/0.5 V の速度に Slide して電流-浴電圧曲線をつくり、任意な浴電圧で 30 min 流電したときの陽極溶解量と陰極析出量を求め、次に初当浴電圧における鍍金度を算出した。

### CuCN 系鍍金液中で実験する場合

著者の経験によると陽極と陰極の電流能率及び鍍金度の変化は鍍金液の濃度が低いほど大きくなる。この性質を利用して低濃度 CuCN 系鍍金液 (CuCN 20 g/L, NaCN 30 g/L, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 15g/L, free-NaCN 5~10 g/L) を供試液として電流能率と鍍金度の変化を明確にすることにつ

とめた。測定槽は 2.0 L の角バット (10.5×14.5×16.0 cm)でその中に 1.5 L の供試液を満した。

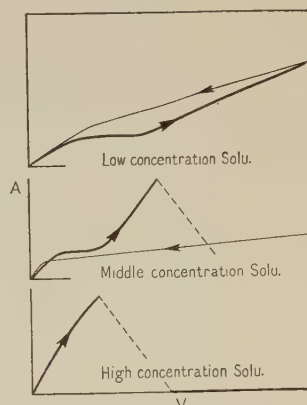
電極には 20×80 mm の銅板(厚さ 0.35 mm) 2枚を用い、浸漬深度 50 mm, 極間距離 30 mm として固定し写真 1 の装置を使つて 15~45°C(±0.5°C)の間に液温を変え、一定液温における浴電圧と電流密度の時間的な変化、60 min 流電したときの電流能率、電流量、鍍金度などを求めた。電源にはスライダック式セレン整流器一基を用いた。

本実験を行うに費した所要時間は約 1,200 時間である

## 3. 実験結果並びに考察

### 1.) 電流密度と浴電圧の関係

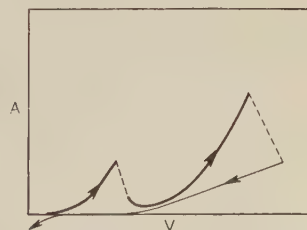
CuSO<sub>4</sub> 水溶液のいろいろな濃度浴を使つて電流-浴電圧曲線を描くと、曲線の性質は濃度に応じて大凡 3 つ



第 1 図 CuSO<sub>4</sub> 水溶液による電流-浴電圧曲線の 3 態

の形に分類されることがわかる。第 1 図がその曲線である。硫酸銅の標準鍍金液 (CuSO<sub>4</sub> · 5H<sub>2</sub>O 200 g, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (s.g. 1.84) 50 g, H<sub>2</sub>O 1 L) の曲線は CuSO<sub>4</sub> の濃厚水溶液の場合と大体同じになる<sup>11)</sup>。

CuCN 系鍍金液の曲線は CuSO<sub>4</sub> 系鍍金液の曲線に較



第 2 図 CuCN 系鍍金液による基本的な電流-浴電圧曲線

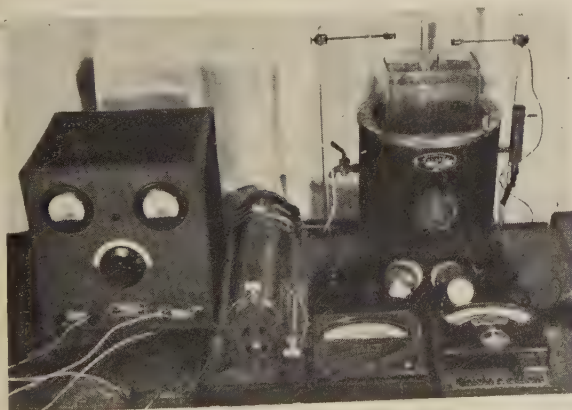


写真 1 実験装置



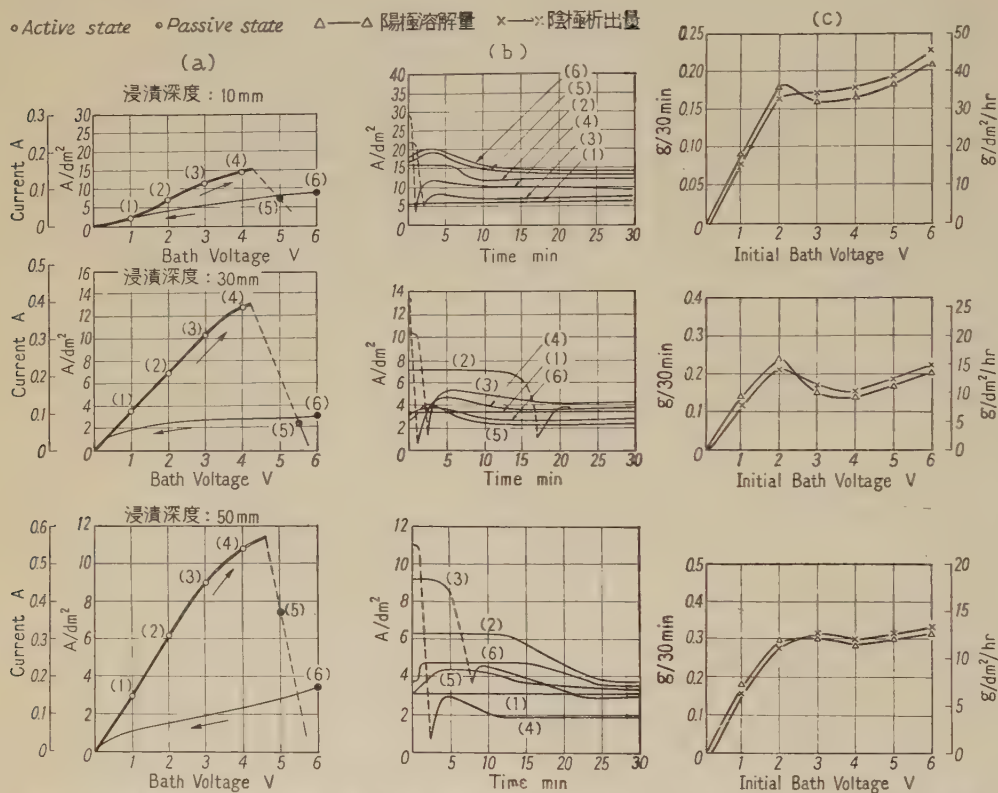
べて一般に複雑である。ある条件のもとでは浴電圧と電流の急変が何回もくりかえされる。液の濃度にも多少は影響するが代表的な曲線は第2図のようである。

他の電解質水溶液の場合にもそうであるが酸性液とアルカリ性液の違いは一つの曲線に受働態化現象が何回現われるか、受働態化後の陽極の挙動がどのようなものであるか

などによつても決まる。アルカリ性液の錯塩の影響を電流-浴電圧曲線によつて推察することは誠に興味深いことである。

## 2.) 浴電圧と電流密度の時間的变化

電極の表面積がある程度大きければ時間の変化は殆んど無視して考えることが出来る。第3図(b), 第4図



第3図 電流密度-浴電圧曲線、電流密度-時間曲線並びに 30 min の流電による陽極溶解量・陰極析出量と初当浴電圧との関係曲線(20%— $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  電極の幅 5 mm)

(b)はその傾向を示している。

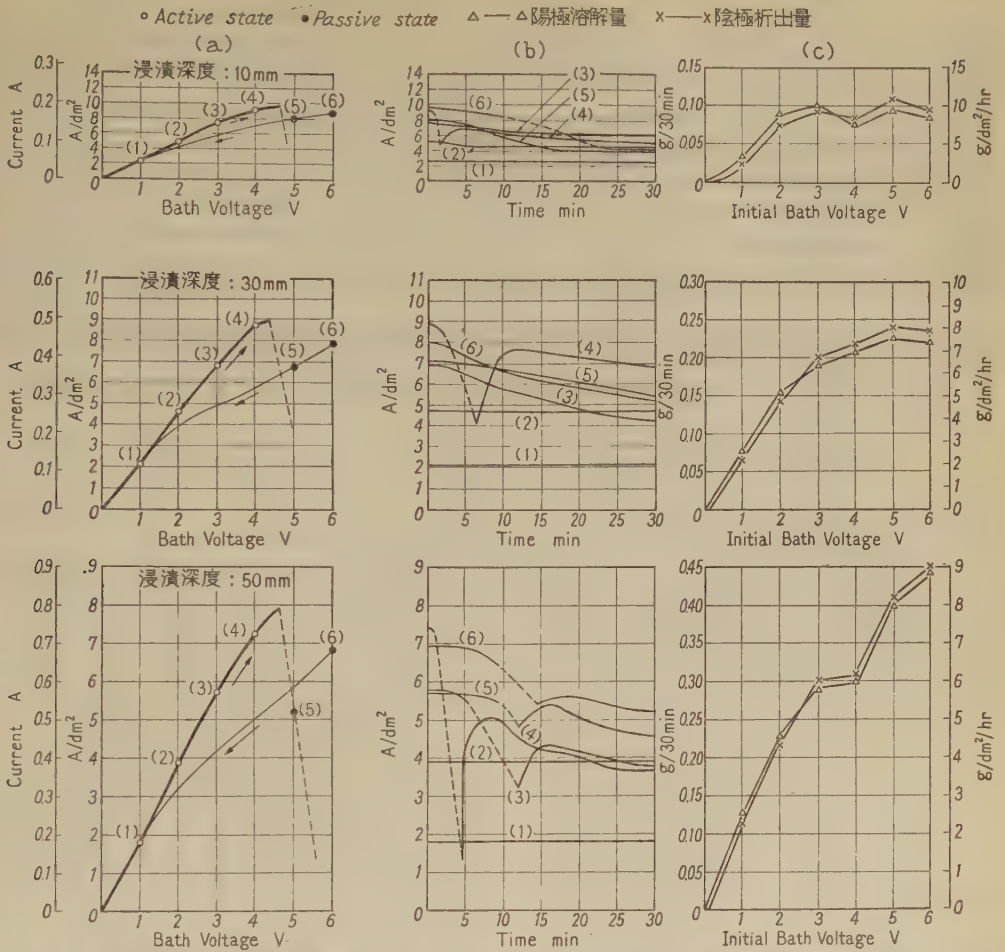
表面積の小さい電極では浴電圧が臨界受働態化の領域に達しているか否かによつて、時間変化の曲線の傾向が定まる。臨界点以下ならば時間による変化は殆んど現われないから、そのときの電流密度と浴電圧の時間変化曲線は直線になる。臨界点以上ならば総じて電流密度は降下→上昇型、浴電圧は第5図、第6図のように上昇→降下型を経てから定常状態になる。

## 3.) 陽極表面の可視的皮膜の変色性

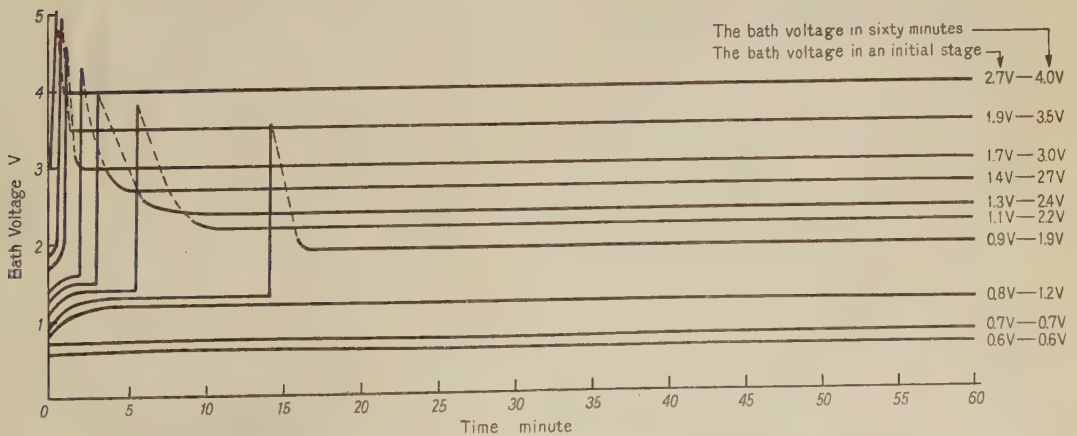
陽極表面の時間的变化を第9報の論旨に基いて推察すると、

「Cu イオンの 溶出→結晶性金層塩層の形成(初期現

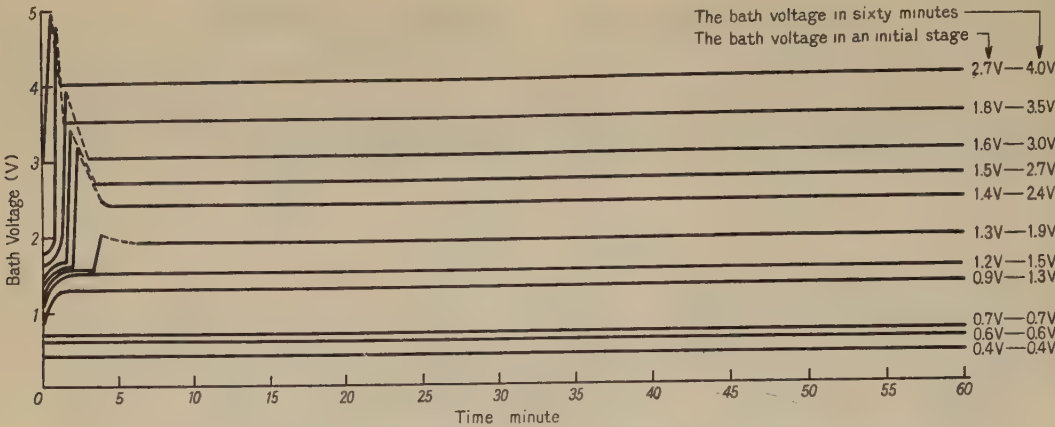
象)→溶解を阻止する保護皮膜の生成(中期現象)→皮膜の一部剥離または再生による安定状態(後期現象)」の過程を経由するものと考えられる。この過程における可視的皮膜の変色性について観察すると  $\text{CuSO}_4$  水溶液の場合は、浴電圧が高くなるにつれて黄橙色が濃くなり、受働態化の後では茶色黄色が次第に濃くなり、定常状態のもとでは反射度の高い赤橙色あるいは干渉色になる。また液の濃度が高いと受働態化されたときの陽極表面は橙朱色になる。硫酸銅の青緑色の結晶は高濃度、低温の場合にはつきり観察される。 $\text{CuCN}$  系鍍金液の場合には様々に変色するが概して鮮明な皮膜を呈し、浴電圧によつて大体統一される。第1表はその変色概況である。



第 4 図 電流密度-浴電圧曲線, 電流密度-時間曲線並びに 30 min の流電による陽極溶解量・陰極析出量と初当浴電圧との関係曲線 (20%- $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , 電極の幅 10 mm)



第 5 図 低濃度  $\text{CuCN}$  系鍍金  $15^\circ\text{C}$  浴における浴電圧と流電時間の関係曲線



第 6 図 低濃度 CuCN 系鍍金 35°C 浴における浴電圧と流電時間の関係曲線

第 1 表 陽極表面の可視的皮膜の変色状況  
(低濃度青化銅鍍金液)

15~50°C における総括観察  
流電時間 60 min の場合

着色状況	浴電圧	備 考
薄茶褐色	0.6~1.3V	低温液(15°)では 0.6V, 高温液(50°C)では 1.3V までこの色を保つ
黒 色	1.5~2.4V	CuO と $\text{Na}_2\text{Cu}(\text{CN})_3$ では色調に若干の相異がある。
緑(草)色	1.9~2.4V	多くは $\text{CuCN} + \text{Cu}(\text{CN})_2$ の生成である。
黒・緑混色	1.9~2.4V	流電時間が長いほど混色になり易い。
茶・緑混色	2.5V 以上	茶色(下部), 緑色(上部)で, 時間がたつにつれて緑色が濃く厚くなる。

(註) 1) pH 11.8 附近では黄色, 乳白色が現われ易い。  
2) 一般に pH 11.4~11.6 では薄茶褐色。pH 12.0 以上では皮膜の生成が殆んど認められなくなる。  
3) 変色過程は浴電圧に対して大体 薄茶色→褐色→黒色→緑色→青色(ある場合には乳白色)の順序である。

4.)  $\text{CuSO}_4$  水溶液中における銅の陽極溶解量並びに陰極析出量

$\text{CuSO}_4$  水溶液の濃度を 10~30% の間に変えてつくつた第 7 図の電流密度-浴電圧曲線に基づいて初当浴電圧に対する陽極溶解量と陰極析出量を測定し, その値を  $\text{g}/10\text{ cm}^2/30\text{ min}$  に換算し, それから鍍金度を算出すると第 2 表のようになる。

初当浴電圧に対する陽極溶解量と陰極析出量の変化は第 2 表および第 3 図(C), 第 4 図(C)に明らかなように, 2.5 V 以下では大体溶解量, それ以上の浴電圧では大体

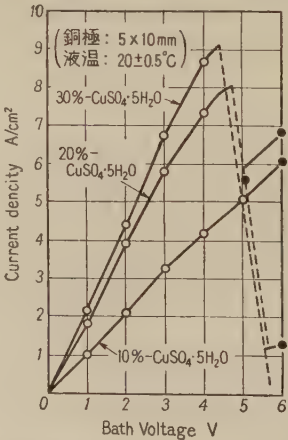
析出量がそれぞれ多くなる。しかしその差は  $0.02\text{ g}/30\text{ min}$  程度である。

鍍金度は大方低浴電圧では 100% よりも小, 高浴電圧では 100% よりも大となる。しかしその差は  $100 \pm 10\%$  程度である。

この場合, 臨界受働態化に変化をおよぼす電極の浸漬表面積の影響が鍍金度を最もよく支配すると考えられるが, その結果は第 8 図に示す通りである。

曲線変化の傾向は前記と同様である。ただし鍍金度は低浴電圧では表面積が大きいほど, 高浴電圧では表面積が小さいほどそれぞれ大きくなる傾向がある。電気鍍金の実作業において鍍金度が 100% になる可能性が非常に大きいと考えられるのはこのためである。

以上に示す浴電圧はいずれも初当浴電圧に基づいた値



第 7 図 第 2 表のための初当浴電圧と初当電流密度との関係曲線  
○ Active State  
● Passive State



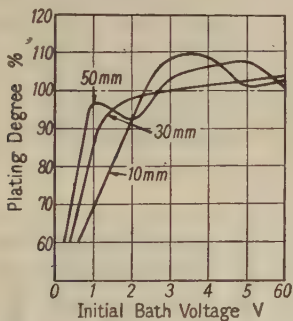
第 2 表  $\text{CuSO}_4$  水溶液中における陽極と陰極の定量的相互関係

(電極表面積:  $10 \times 50 \text{ mm}$ , 液温:  $20 \pm 0.5^\circ \text{C}$ )

初当浴電圧 (V)	$\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ Weight %	初当電流密度 ( $\text{A}/\text{dm}^2$ )	流電後の一定電流密度 ( $\text{A}/\text{dm}^2$ )	陽極溶解量 ( $\text{g}/10\text{cm}^2/30\text{min}$ )	陰極析出量 ( $\text{g}/10\text{cm}^2/30\text{min}$ )	鍍金度 (%)
1	10	1.0	1.0	0.0724	0.0720	99.6
	20	1.8	1.8	0.1322	0.1231	93.3
	30	2.1	2.1	0.1201	0.1179	90.0
2	10	2.1	2.1	0.1578	0.1464	93.1
	20	3.9	3.9	0.2317	0.2292	98.9
	30	4.4	1.0	0.1802	0.1799	100.3
3	10	3.3	3.3	0.1872	0.2005	107.0
	20	7.4	3.7	0.2938	0.2955	102.2
	30	6.8	1.5	0.1455	0.1470	101.1
4	10	4.2	4.2	0.2374	0.2492	105.2
	20	5.8	3.8	0.2955	0.2984	102.2
	30	8.7	3.9	0.2366	0.2386	100.8
5	10	5.1	5.1	0.2816	0.2918	103.0
	20	5.7	4.6	0.3847	0.3890	102.1
	30	5.0	2.0	0.2037	0.2049	100.6
6	10	6.1	6.1	0.3959	0.3981	101.0
	20	6.9	5.2	0.4438	0.4616	105.5
	30	1.3	1.9	0.1642	0.1740	110.9

(注) この表の中の数値は初当浴電圧または初当電流密度について表わされている。もしも時間経過後の所定浴電圧か所定電流密度で表わすとする、溶解量、析出量は更に増し、鍍金度はより低い浴電圧で 100% になる。

であるが、電流時間を考慮に入れると実際の浴電圧は初



第 8 図 電極の浸漬深度の影響

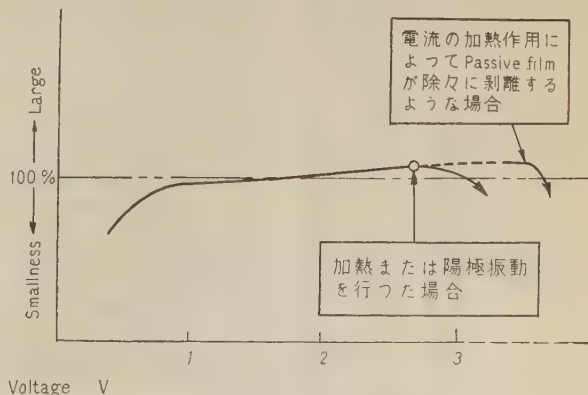
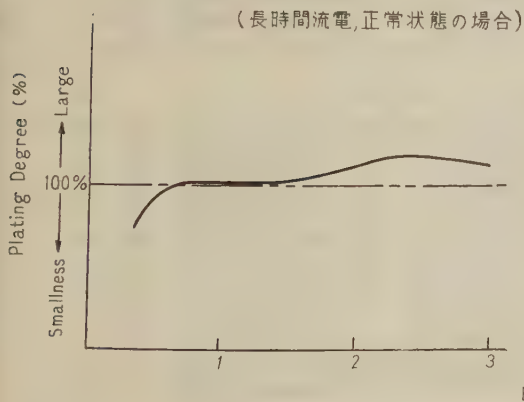
当浴電圧より遙かに低くなる、陽極溶解量と陰極析出量が同じになる 2.5 V の浴電圧を流電時間後の定常浴電圧で表わすとしたらその値は 1.8 V 前後である<sup>12)</sup>。

既知の鍍金液を使えば陽極溶解量と陰極析出量のバランスを保ちながら操作することが出来る。 $\text{CuSO}_4$  系鍍金液を  $\text{CuSO}_4$  の単一液に較べると前者は後者よりも相互量が多く、鍍金度は単一液の場合より低く 0.5~1.0V の間で 100% になる<sup>13)</sup>。その概念図を第 9 図に示めす。

#### 5.) $\text{CuCN}$ 系鍍金液における銅の陽極溶解量並びに陰極析出量

$\text{CuCN}$  系鍍金液は液を加熱しながら操作するのが習しである。

(短時間流電または不連続状態の場合)



第 9 図 標準酸性銅鍍金液による鍍金度-定常浴電圧の基本曲線(常温)

第 3 表 銅陽極の表面変化とそれに伴う陰極との定量的相互関係に対する総合結果  
(低濃度 CuCN 系鍍金液; 液温 15±0.5°C)

膜 皮 可 視	流電状態における変化					陰 極			陽 極			可視の皮膜を除去した場合			陽 極			可視の皮膜を除去した場合			
	初当浴電圧 (V)	流電時間 (min)	量流電 (Coulomb)	流電後の一定電圧 (V)	流電後の一定電流密度 (A/dm <sup>2</sup> )	析出量(g) (実測値)	析出量(g) (60 min) (に換算)	電流能率 (%)	溶解量(g) (実測値)	溶解量(g) (60 min) (に換算)	電流能率 (%)	鍍金 (%)	理論溶解析出量 (g)	溶解量(g) (実測値)	電流能率 (%)	鍍金 (%)	理論溶解析出量 (g)	溶解量(g) (実測値)	電流能率 (%)	鍍金 (%)	
褐茶*	0.6	40	19	0.6	0.05	0.0046	0.0069	350.0127	0.0191	98	360.0195	0.0127	98	36	98	36	0.9~1.1V の間が好適	98	36	98	36
褐茶*	0.7	30	20	0.7	0.06	0.0060	0.0120	440.0130	0.0260	95	460.0276	0.0130	95	46	95	46		95	46	95	46
褐茶*	0.8	35	56	1.2	0.15	0.0200	0.0342	530.0372	0.0635	97	540.0651	0.0372	97	54	97	54		97	54	97	54
黒茶	0.9	50	120	1.9	0.20	0.0044	0.0533	560.0780	0.0935	99	570.0950	0.0680	86	65	86	65		86	65	86	65
黒茶	1.1	35	90	2.2	0.25	0.0340	0.0582	580.0406	0.0693	69	840.1010	0.0306	52	111	52	111		52	111	52	111
黒茶	1.2	35	147	2.4	0.35	0.0357	0.0953	580.0555	0.0948	57	1000.1663	0.0445	46	125	46	125		46	125	46	125
茶緑	1.3	60	378	2.7	0.50	0.0432	0.0492	200.0389	0.0389	16	1260.2480	0.0289	12	170	12	170		12	170	12	170
茶緑	1.7	40	242	3.0	(0.61)	0.0717	0.1075	450.0427	0.0640	22	1680.2385	0.0177	11	400	11	400		11	400	11	400
茶緑	1.9	30	197	3.5	0.40	0.0440	0.0880	340.0565	0.1130	44	780.2580	0.0318	25	137	25	137		25	137	25	137
茶緑	2.7	60	345	4.0	(0.85)	0.1395	0.1395	620.1745	0.1745	77	730.2270	0.1515	67	92	67	92		67	92	67	92

\*...可視の皮膜の重量は殆んど無視して考えられる。( )...電流計の振動が激しくて定め難いもの  
可視の皮膜の影響のないものまたは好能率, 好条件のものに対しては太字, 太線で表わす。

第 4 表 (低濃度 CuCN 系鍍金液; 液温 30±0.5°C)

薄茶*	0.4	60	24	0.4	0.03	0.0068	0.0063	430.0156	0.0156	98	440.0160	0.0156	98	44
薄茶*	0.6	65	48	0.6	0.06	0.0170	0.0160	630.0263	0.0247	97	640.0270	0.0263	97	64
褐茶*	0.7	30	40	0.7	0.08	0.0158	0.0316	610.0244	0.0488	91	650.0260	0.0244	94	65
"	1.1	35	98	1.2	0.25	0.0340	0.0583	530.0648	0.1105	100	520.0645	0.0648	100	52
"	1.2	55	312	1.9	0.45	0.1200	0.1305	590.1647	0.2120	95	620.2050	0.1847	90	65
黒茶	1.3	35	226	2.2	0.50	0.0838	0.1418	570.0840	0.1440	56	1000.1485	0.0740	50	113
黒茶	1.4	35	280	2.4	0.60	0.0820	0.1400	450.0740	0.1260	41	1100.1840	0.0640	35	128
黒茶	1.5	45	378	2.7	0.70	0.1262	0.1700	510.0943	0.1260	38	1340.2480	0.0843	34	149
"	1.6	30	288	3.0	0.80	0.0900	0.1800	480.0540	0.1080	29	1660.1890	0.0480	25	187
"	1.8	60	500	3.5	(0.75)	0.1642	0.1642	500.1541	0.1541	47	1060.3280	0.1341	41	122

第 5 表 (低濃度 CuCN 系鍍金液; 液温 35±0.5°C)

ナシ	0.4	60	45	0.4	0.05	0.0129	0.129	440.0290	0.0290	99	450.0235	0.0290	99	45
黄茶*	0.6	60	61	0.6	0.07	0.0273	0.0273	680.0396	0.0396	98	630.0400	0.0396	98	69
薄茶*	0.7	30	54	0.7	0.15	0.0257	0.0154	730.0343	0.0686	97	740.0355	0.0343	97	74
褐茶*	0.9	35	128	1.3	0.35	0.0448	0.0675	550.0817	0.1390	97	550.0842	0.0817	97	55
黒茶	1.2	55	297	1.5	0.45	0.1080	0.1175	550.1870	0.2040	96	570.1950	0.1870	96	57
茶緑	1.3	40	288	1.9	0.60	0.0966	0.1450	530.1610	0.2418	85	600.1890	0.1560	83	63
茶緑	1.4	40	360	2.4	0.75	0.1280	0.1920	540.1072	0.1600	46	1190.2360	0.0972	41	131
"	1.5	50	490	2.7	0.80	0.1740	0.2090	540.1350	0.1620	42	1280.3210	0.1230	38	141
"	1.6	30	338	3.0	0.90	0.0960	0.1920	430.0685	0.1370	31	1400.2210	0.0635	29	151
"	1.8	40	575	3.5	(0.70)	0.1342	0.2020	360.1135	0.1680	30	1180.3780	0.1015	27	132
"	2.7	60	515	4.0	(0.90)	0.1253	0.1253	370.1535	0.1535	45	730.3380	0.1485	44	85

第 6 表 (低濃度 CuCN 系鍍金液; 液温 45±0.5°C)

ナシ	0.4	60	47	0.4	0.06	0.0200	0.0200	650.0305	0.0305	99	690.0310	0.0305	99	69
黄茶*	0.6	60	89	0.6	0.10	0.0440	0.0440	750.0575	0.0575	98	760.0585	0.0575	98	76
薄茶*	0.7	60	140	0.7	0.20	0.0760	0.0760	800.0920	0.0920	96	820.0950	0.0920	96	82
褐茶*	1.1	45	270	1.3	0.50	0.0990	0.1330	560.1700	0.2280	96	580.2360	0.1700	96	58
黒茶	1.2	45	406	1.6	0.80	0.1576	0.2120	590.2544	0.3460	96	610.3547	0.2544	96	61
茶緑	1.3	50	480	1.9	0.85	0.1860	0.2240	590.2850	0.3420	91	650.3770	0.2700	86	68
茶緑	1.4	50	496	2.0	0.90	0.1750	0.2100	540.2200	0.2640	68	800.3910	0.2080	64	84
黒茶	1.6	63	705	2.3	0.95	0.2480	0.2360	540.2114	0.2000	46	1170.4350	0.1944	42	127
茶緑	1.7	60	800	2.7	1.20	0.2970	0.2960	560.2440	0.2440	46	1240.5280	0.2205	42	135
茶緑	1.8	60	925	3.0	1.30	0.3100	0.3100	510.2350	0.2350	38	1340.6120	0.2110	35	145
"	1.9	50	915	3.2	1.35	0.2385	0.2860	400.1700	0.2040	28	1400.7200	0.1560	26	153
"	2.0	60	1610	3.5	0.90	0.3086	0.3086	290.2448	0.2448	23	1261.0640	0.2128	20	145
"	2.8	60	513	4.0	0.80	0.2106	0.2100	620.2080	0.2080	62	1010.3375	0.1822	54	116

各表注意事項は第 3 表と同じ

まづ 30, 35 および 45°C ( $\pm 0.5^\circ\text{C}$ ) の各液温について、浴電圧と電流密度の時間的変化と、そのときの陽極溶解量、陰極析出量を測り、図積々分によつて電流量を求め、それを  $\text{g}/0.2\text{dm}^2/60\text{min}$  に換算してそれより電流能率と鍍金度を算出する。第3表～第6表（3回の平均値）はその総合結果の一例である。この実験には流電総時間 264 時間を要し、前処理、秤量算出等を含め約 500 時間を費している。

以上の表には陽極と陰極の定量的関係のほかに、陽極表面の可視的皮膜の変性、流電時間による浴電圧と電流密度の動きなども示してあるので、CuCN 系鍍金液中における銅陽極の流電的性質を総括的に把握するのに、操作中における系統的な現象を知る上にも好都合であろうと思う。

またこの結果を含む、実用温度（鍍金作業で実際に使われている液温） $45 \pm 0.5^\circ\text{C}$  における陽極溶解量・陰極析出量、陽極と陰極の電流能率、鍍金度の定常浴電圧並びに定常電流密度に対する詳細な関係曲線は第 10 図の如くである。

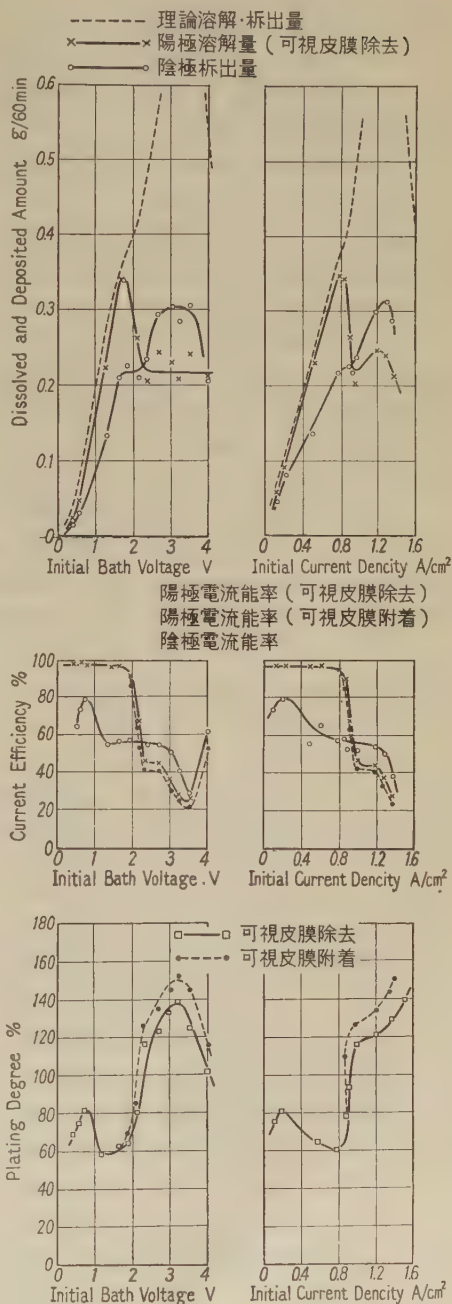
第 10 図の総合図は横軸に浴電圧と電流密度、縦軸に増減量の理論値と実験値、電流能率、鍍金度などをとつて、一連の 3 つの変態が浴電圧と電流密度で如何に統一出来るか、3 つの曲線的傾向に如何なる関連性があるかなどの点を遂究する目的でつくつたものである。

第3表～第6表および第10図より次の事柄が明白である。

(1) 陽極皮膜の色の変化は第 1 表の通りであるが、液温による多少の変化が認められる。皮膜は陽極が Active State であればかなり長い時間にわたつて流電しても重量を増さない。しかし液温が低いと薄茶色～褐色に、液温が高いと黄茶色に染色するのが普通である。第3表～第6表中の太字は皮膜が流電時間の影響を受けていないことを示している。

(2) 陽極溶解量・陰極析出量と浴電圧との曲線の傾向は液温を  $15 \sim 45^\circ\text{C}$  の間に変えても変わらない。陽極溶解量は  $0 \sim 1.8\text{V}$  の間で理論溶解析出量と殆んど同じになり、 $1.8\text{V}$  付近で急に減少し、 $2.0 \sim 2.2\text{V}$  の間で陰極析出量と略同じ量になり、それより高い浴電圧を与えると陰極析出量よりも少ない量になる。陰極析出量は  $3.0\text{V}$  付近で減少し、 $4.0\text{V}$  で再び陽極溶解量と同じになる。

以上の結果から陽極溶解量はその液の分解電圧よりも低い浴電圧で理論量に最も近くなり、 $2.0 \sim 2.2\text{V}$  の間で理論量の約  $1/2$  に低下することがわかる<sup>14)</sup>。



第 10 図 定常浴電圧または定常電流密度に対する陽極溶解・陰極析出量、電流能率、鍍金度の変化曲線。

(低濃度 CuCN 系鍍金液)  
液温:  $45 \pm 0.5^\circ\text{C}$



陽極溶解量は  $0.8 \text{ A/dm}^2$  附近で理論量に最も近い値になり、 $1.0 \text{ A/dm}^2$  附近では陰極析出量と大体同じ量になる。しかし同じ電流密度であつてもそのときに陽極が受働態化しているか否かによつて陽極の表面状態が変わるので、一般に電流密度では決め難い。

アルカリ性鍍金液の陰極電流能率が全般的に低いのは実にこのような傾向のあらわれである。

(3) 電流能率と浴電圧または電流能率と電流密度の曲線の傾向は液温を  $15 \sim 45^\circ\text{C}$  の間に変えても変わらない。第3表～第6表を総括すると  $2.0 \sim 2.2 \text{ V}$  を中心としてそれよりも低い浴電圧では陽極、高い浴電圧では陰極の電流能率がそれぞれ高く、陽極電流能率はその液の分解電圧よりも低い浴電圧で 95% 前後の高率を示し、 $2.0 \text{ V}$  で急に減少し  $2.2 \sim 2.4 \text{ V}$  で 40% 前後となり、 $2.7 \sim 3.0 \text{ V}$  では 20% 前後の最小率を示す結果になる<sup>15)</sup>。しかし浴電圧をそれよりも高くすると緻密な皮膜の絶縁破壊が起り、その際生じる pore 内を通過する電流の加熱作用によつて陽極の溶解が活発化し、金属塩の電解が過剰になるために回復の傾向を示し電流能率は逆に高くなる。

陰極電流能率は  $0.7 \text{ V}$  で最高率、 $1.2 \sim 2.5 \text{ V}$  で 60% 前後に下りその後は陽極電流能率と同一勾配になる。

陽極の可視的皮膜の影響は  $1.8 \text{ V}$  以上の浴電圧で見受けられるがそれでも電流能率が  $4 \pm 1\%$  だけ低くなる程度である。最も高い電流能率を示すときの電流密度は大体  $0.8 \text{ A/dm}^2$  もしくはそれより低い場合であるが、記前の理由により一般に電流密度では決め難い。

(4) 鍍金度の変化は浴電圧に対して規則的である。特に鍍金度が 100% になるときの浴電圧はその液の分解電圧に大体等しく、それより低い浴電圧では 100% よりも小、高い浴電圧では 100% よりも大となる。 $0.4 \sim 1.3 \text{ V}$ 、 $2.5 \sim 4.0 \text{ V}$  の間では液温による差が 10% 前後である<sup>16)</sup>。実作業における最適液温  $45 \pm 1^\circ\text{C}$  のもてでは可視的皮膜が鍍金度に与える誤差が 15% 前後である。

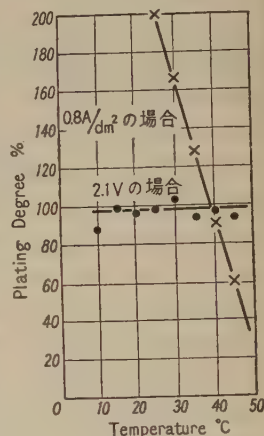
第3表～第6表から鍍金度が 100% になる浴電圧の範囲を決めると初当浴電圧の場合には液温が  $15^\circ\text{C}$  では  $1.2 \text{ V}$ 、 $30^\circ\text{C}$  では  $1.3 \sim 1.4 \text{ V}$ 、 $35^\circ\text{C}$  では  $1.3 \sim 1.4 \text{ V}$ 、 $45^\circ\text{C}$  では  $1.4 \sim 1.6 \text{ V}$  となり、60 min 後の定常浴電圧の場合には液温が  $15^\circ\text{C}$  では  $2.2 \text{ V}$ 、 $30^\circ\text{C}$  では  $2.0 \sim 2.2 \text{ V}$ 、 $35^\circ\text{C}$  では略  $2.1 \text{ V}$ 、 $45^\circ\text{C}$  では略  $2.1 \text{ V}$  となる。

以上により陽極溶解量と陰極析出量のバランスを保つには初当浴電圧を  $1.3 \sim 1.6 \text{ V}$ 、即ち定常浴電圧を  $2.0 \sim$

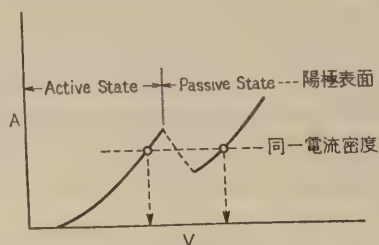
$2.4 \text{ V}$  に保つて行えばよいことになる。しかし定常浴電圧は長く流電することによつて当然変化するのであることが予想される。表中に太字で記入した陽極と陰極の電流能率や皮膜の生成が認められない低い浴電圧における好条件などから考察すると定常浴電圧としては  $1.8 \sim 2.0 \text{ V}$  同様にして高濃度  $\text{CuCN}$  系鍍金液では  $1.6 \sim 1.8 \text{ V}$  に管理することの必要性が認められる。

(5) 鍍金度と電流密度の曲線は鍍金度と浴電圧の曲線のように一律な関係を示めさない。前記の実験で最も結果のよかつた  $0.8 \text{ A/dm}^2$  の電流密度と  $2.1 \text{ V}$  の浴電圧における鍍金度を浴温との変化曲線として表わすと第11図のようになる。

電流密度では陽極と陰極の相互関係を統一することが殆んど出来ない。その直接の理由は電流密度が等しくても陽極が Active State のときと Passive State のときの陽極溶解と陰極析出の状態が全く変わってくる場合があるからである。この概念図を示せば第12図の如くである。



第11図  $2.1 \text{ V}$  および  $0.8 \text{ A/dm}^2$  における鍍金度と液温との関係 ( $\text{CuCN}$  系低濃度鍍金液)



第12図 同じ電流密度であつても浴電圧が異なる場合の概念図

#### 4. 結 言

表面積の等しい陽極と陰極の相互関係を定量的にしらべ、凡そ次のような結論を導いた。

- 1) 基本となる電流-浴電圧曲線は酸性液の場合は第1図、アルカリ性液の場合は第2図の如くである。
- 2) 浴電圧と電流密度の時間による変化の傾向は、初めに与える値が瞬間的受働態化の領域にあるか否か、あ

る時間において受働態化が成立するか否かの2点によって凡そ定まる。

3) 陽極表面の可視的皮膜は酸性液の場合とアルカリ性液の場合とで異なる。酸性液中では黄色、茶色、赤色の3色が現われて混色が多く。アルカリ性液中では茶色、褐色、黒色、緑色、青色の5色が現われ、鮮明な色調になり、変色過程もかなりはつきりする。

可視的皮膜の変色性を浴電圧によつて統一することは妥当である。

4)  $\text{CuSO}_4$  水溶液中では初当浴電圧が略 2.5V, 定常浴電圧が 1.0~1.5V を中心としてそれより低い浴電圧では陽極溶解量>陰極析出量となり、高い浴電圧ではその逆になる。鍍金度は 100±20% の間に变化する。したがつて陽極と陰極の電流能率は非常に近い値になる。

5) 硫酸銅標準液では 0.5~1.0V の浴電圧で 100% の鍍金度になる。

6)  $\text{CuCN}$  系鍍金液中では 0~1.8V の間で陽極溶解量とその理論量とが略同じになり、2.0~2.2V で陽極溶解量=陰極析出量となり、それより高い浴電圧では陰極析出量の方がかえつて多くなる。

7)  $\text{CuCN}$  系鍍金液による電流能率は 2.0~2.2V を中心としてそれより低い浴電圧では陽極、高い浴電圧では陰極がそれぞれ大きくなる。

8)  $\text{CuCN}$  系鍍金液による鍍金度は 2.0~2.2V の間で 100% になり、それより低い浴電圧では 100% より小さく、高い浴電圧では 100% より大きくなる。

9) 陽極溶解量、陰極析出量は液温が高いほど多くなるが、理論量との関係は液温を変えても変らない。15~45°C の間に液温を変えた場合に電流能率と浴電圧、鍍金度と浴電圧の2つの曲線は殆んど同じ型になる。

10) 鍍金度は電流密度によつて表わすよりも浴電圧で表わした方が取扱上便利であり、一律の関係、即ち鍍金度の統一は浴電圧に基いてはじめて可能である。

11)  $\text{CuCN}$  系鍍金液を用いたときの定常浴電圧は、低濃度では 1.8~2.0V, 高濃度浴では 1.6~1.8V に

管理することが望ましい。

銅鍍金における浴電圧管理の重要性は以上の研究結果において明白である。

第10報を終るに当り、御鞭撻を戴いた市川良正教授、中原万次郎教授本学諸先生並びに腐蝕防蝕関係者各位の御好意を此処に記し厚く感謝の意を表する次第である。

## 文 献

- 1) 安房: 日本大学工学研究所彙報 **3**, 33~40; **4**, 31~39; **5**, 27~32; **6**, 1~4, 5~9 (1951~1953)
- 2) 安房: 日本大学工学研究所彙報 **8**, 40~45 (1954)
- 3) 安房: 日本大学工学研究所彙報 **9**, 21~26; 27~31 (1954)
- 4) 安房: 日本大学工学研究所彙報 **11**, 52~62 (1955)
- 5) 安房: 金属表面技術 **1**, No. 3, 4, 21~26; **3**, No. 1, 20~26; **3**, No. 2, 14~19; **3**, No. 3, 20~23; **4**, No. 6, 11~14 (1950~1953); 鍍金情報 **42** (1951)  
(光沢亜鉛鍍金法の講習会を行い業界に公開した。東京鍍金会館(1951年7月2日))
- 6) 安房: 金属表面技術 **6**, No. 2, 8~11; **6**, No. 3, 15~19 (1955); 鍍金情報 **178** (1955); **181** (1955)  
“クロム鍍金の均一電着性に関する研究” 電気化学協会に投稿中。  
“クロム鍍金の不均一硬度に関する研究” 日本金属学会に投稿予定。
- 7) 安房: 鍍金情報 **193**, **194** (1955), **197**, **198**, **199** (1956)
- 8) 安房: “流電作用による金属表面の諸現象に関する研究”(第11報~第15報) 金属表面技術に投稿中  
安房: 金属防蝕 **3**, 9, 2~3; **3**, 10, 2~3; **3**, 11, 2~3; **3**, 12, 4~5 (1956)
- 9) 10) 安房: 鍍金新報 **30**, **31** (1951); 鍍金情報 **163**, **164**, **165** (1955)
- 11) 安房: 金属表面技術 **2**, No. 1, 24 (1951); **7**, No. 2, 62 (1956)
- 12) 13) 安房: 金属表面技術 **1**, No. 2, 3, 25 (1950)
- 14) 15) 安房: “青化銅鍍金における陽極現象の研究”(第4報) 日本金属学会誌 第20巻, 第3号に掲載決定
- 16) 安房: 日本金属学会誌 **20**, 13~14 (1956)





昭和31年12月25日印刷

昭和31年12月30日発行

発行者

日本大学工学研究所  
東京都千代田区神田駿河台1丁目8番地  
電話東京(29) 7711—7719

Published by: The Research Institute of  
Technology, Nihon University.  
Address: No. 8, 1-Chome, Surugadai,  
Kanda, Chiyoda-ku, Tokyo.

印刷所

株式会社 国際文献印刷社  
東京都千代田区富士見町1丁目10番地

印刷者

笠井 康 頼  
東京都千代田区富士見町1丁目10番地

(非 売 品)

